PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2003-077673

(43)Date of publication of application: 14.03.2003

(51)Int.Cl.

H05B 33/14 C09K 11/06 H05B 33/10 H05B 33/22 // C07D213/16 C07D277/66 C07D409/14

(21)Application number: 2001-297338

(71)Applicant: HONDA MOTOR CO LTD

(22)Date of filing:

27.09.2001

(72)Inventor: TSUGE HODAKA

KOMATSUZAKI AKIHIRO

(30)Priority

Priority number: 2001185486

Priority date: 19.06.2001

Priority country: JP

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent element providing high light emission efficiency.

SOLUTION: In this organic electroluminescent element formed between both electrode layers, namely, an anode layer and a cathode layer and provided with a light emitting layer having host agent and dope agent irradiating phosphorescence, a positive hole carrier layer, and an electron carrier layer, the host agent is composed of polymer having repeated unit expressed by the general formula (1) or (2). In the formula (1), R denotes any of hydrogen, aliphatic hydrocarbon group, aromatic hydrocarbon group, ether group, and heterocyclic group. In the formula (2), R denotes any of hydrogen, aliphatic hydrocarbon group, aromatic hydrocarbon group, ether group, and heterocyclic group.

$$\begin{array}{c}
\begin{pmatrix} C \\ C \end{pmatrix} \\
R \\
\end{array}$$
(1)

$$\left(\begin{array}{c}
0 \\
N \\
R
\end{array}\right) (2)$$

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

* NOTICES *

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The organic electroluminescent element characterized by said host agent consisting of a conductive polymer in the organic electroluminescent element possessing the luminous layer which is formed between an anode plate layer and the two-electrodes layer of catholyte, and has a host agent and the doping agent which emits phosphorescence, an electron hole transportation layer, and an electronic transportation layer.

[Claim 2] Said conductive polymer is [Formula 1].



(R shows hydrogen, an aliphatic hydrocarbon radical, an aromatic hydrocarbon radical, a ether group, or a heterocycle radical among a general formula [-izing 1].) A general formula [-izing 1] or [Formula 2]



(R shows hydrogen, an aliphatic hydrocarbon radical, an aromatic hydrocarbon radical, a ether group, or a heterocycle radical among a general formula [-izing 2].) The organic electroluminescent element according to claim 1 characterized by consisting of polymers which have the repeat unit expressed with a general formula [-izing 2].

[Claim 3] The polymer which repeats the above [-izing 1] or [-izing 2], and it has in a unit is an organic electroluminescent element according to claim 2 characterized by consisting of a copolymer.

[Claim 4] R in the repeat unit expressed with the above [-izing 1] or [-izing 2] is an organic electroluminescent element according to claim 2 or 3 characterized by consisting of a with a carbon number of 15 or less alkyl group.

[Claim 5] R in the repeat unit expressed with the above [-izing 1] or [-izing 2] is an organic electroluminescent element according to claim 2 or 3 characterized by consisting of a with a carbon number of 15 or less alkoxyl group.

[Claim 6] R in the repeat unit expressed with the above [-izing 1] or [-izing 2] is an organic electroluminescent element according to claim 2 or 3 characterized by consisting of the

substituent which has an aryl group.

[Claim 7] The polymer which repeats the above [-izing 1] or [-izing 2], and it has as a unit So that it may be meltable to the solvent which makes insoluble the electronic transportability matter which constitutes said electronic transportation layer while it is meltable to the solvent which makes insoluble the electron hole transportability matter which constitutes said electron hole transportation layer An organic electroluminescent element given in the substituent expressed as R during the above [-izing 1] or [-izing 2] or claim 2 characterized by choosing the molecular weight of said polymer thru/or any 1 term of 6.

[Claim 8] In order to carry out to or less more than 8.9(cal/cm3) 1/213.0(cal/cm3) 1/2, the solubility parameter range in the room temperature of said electron hole transportability matter said polymer The solubility parameter in a room temperature belongs to more than 7.0(cal/cm3) 1/28.9(cal/cm3) 1 / less than two range. N pentane, a hexane, a heptane, n-octane, n-nonane, n-Deccan, The organic electroluminescent element according to claim 7 characterized by being meltable to the solvent of either 1-decene, a methylcyclohexane, a cyclohexane, 1-chloropropane, tetrachloromethane, ethylbenzene or meta xylene.

[Claim 9] While making the solubility parameter range in the room temperature of said electron hole transportability matter into or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 In order to carry out to or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2, the solubility parameter range in the room temperature of said electronic transportability matter said polymer The solubility parameter in a room temperature belongs to 8.9(cal/cm3) 1 / less than two range more greatly than 8.4(cal/cm3) 1/2. The organic electroluminescent element according to claim 7 characterized by being meltable to the solvent of either tetrachloromethane, ethylbenzene or meta xylene.

[Claim 10] While making the solubility parameter range in the room temperature of said electron hole transportability matter into or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 In order to carry out to or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2, the solubility parameter range in the room temperature of said electronic transportability matter said polymer The solubility parameter in a room temperature belongs to 13.0(cal/cm3) 1 / two or less range more greatly than 10.0(cal/cm3) 1/2. The organic electroluminescent element according to claim 7 characterized by being meltable to the solvent of either alpha BUROMO naphthalene, nitroethane, an acetonitrile or nitromethane.

[Claim 11] While making the solubility parameter range in the room temperature of said electron hole transportability matter into or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 In order to carry out to or less more than 11.5(cal/cm3) <SUP>1/213.0(cal/cm3) 1/2, the solubility parameter range in the room temperature of said electronic transportability matter The solubility parameter in a room temperature is larger than 10.0(cal/cm3) 1/2, and said polymer belongs to 11.5(cal/cm3) 1 / less than two range. The organic electroluminescent element according to claim 7 characterized by being meltable to the solvent of either alpha BUROMO naphthalene or nitroethane.

[Claim 12] Said doping agent is [Formula 3].

$$\begin{pmatrix} X_{12} \\ | \\ ArN \end{pmatrix}_{n}^{l_{K}} \begin{pmatrix} X_{13} \\ 3-n \end{pmatrix}_{3-n}$$

(Ar may show an aryl group among a general formula [-izing 3], X12 and X13 may show an aliphatic hydrocarbon radical, an aromatic hydrocarbon radical, a ether group, or a heterocycle

radical independently, respectively, a ring may condense in Ar and X12, and n is or more 1 three or less integer.) An organic electroluminescent element given in claim 1 characterized by consisting of the compound expressed with a general formula [-izing 3] thru/or any 1 term of 11. [Claim 13] Said doping agent is [Formula 4].

the inside of a general formula [-izing 4], and R1-R8 -- respectively -- independent -- hydrogen and an aliphatic hydrocarbon radical -- an aromatic hydrocarbon radical, a ether group, or a heterocycle radical may be shown, or a ring may condense in/and adjoining Rn (integer to which n changes from or more 1 eight or less either). An organic electroluminescent element given in claim 1 characterized by consisting of the compound expressed with a general formula [-izing 4] thru/or any 1 term of 11.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the organic electroluminescent element in which luminescence by high brightness is possible.

[0002]

[Description of the Prior Art] Conventionally, the organic electroluminescent element formed by the multilayer laminated structure equipped with the luminous layer which contains the matter which emits phosphorescence by U.S. Pat. No. 6097147 is known.

[0003] By this thing, to the theoretical limitation of the internal quantum efficiency in the case of making light emit using luminescence by the excitation singlet state, i.e., fluorescence, being 25%, luminescence by phosphorescence may consider the theoretical limitation of internal quantum efficiency to be 100%, in order that the excitation energy of a triplet state may contribute to luminescence. For this reason, improvement in the luminous efficiency defined by the luminescence brightness to driver voltage is expectable.

[Problem(s) to be Solved by the Invention] By the way, at the above-mentioned conventional organic electroluminescent element, it is [0005] as a host agent in a luminous layer. [Formula 5]

[0006] The carbazole biphenyl (henceforth CBP) shown in [-izing 5] is used. Since the mobility

of CBP of an electron hole and an electron is low, it becomes the factor which raises an electric resistance value. Therefore, in making an organic electroluminescent element drive, comparatively high applied voltage is needed, and this will check improvement in expected luminous efficiency.

[0007] In view of the above-mentioned trouble, this invention may emit light by high brightness by drive by the low battery, namely, makes it the technical problem to offer an organic electroluminescent element with high luminous efficiency.

[0008]

[Means for Solving the Problem] In order to solve the above-mentioned technical problem, this invention is formed between an anode plate layer and the two-electrodes layer of catholyte, and uses the conductive polymer for said host agent in the organic electroluminescent element possessing the luminous layer which has a host agent and the doping agent which emits phosphorescence, an electron hole transportation layer, and an electronic transportation layer. Since the mobility of an electron hole and an electron is high, this thing can mitigate the electric resistance value of the organic whole electroluminescent element.

[0009] In this case, it is suitable to constitute from a polymer which has the repeat unit expressed with the above [-izing 1] or [-izing 2] (R shows hydrogen, an aliphatic hydrocarbon radical, an aromatic hydrocarbon radical, a ether group, or a heterocycle radical during a general formula [-izing 1] and [-izing 2].) in said conductive polymer.

[0010] Furthermore, it is also possible to constitute as a copolymer the polymer which repeats the above [-izing 1] or [-izing 2] in this case, and it has in a unit.

[0011] Furthermore, as for R in the repeat unit expressed with the above [-izing 1] or [-izing 2] in this case, it is desirable to consist of a with a carbon number of 15 or less alkyl group.

[0012] Moreover, as for R in the repeat unit expressed with the above [-izing 1] or [-izing 2], it is desirable to consist of a with a carbon number of 15 or less alkoxyl group.

[0013] Moreover, as for R in the repeat unit expressed with the above [-izing 1] or [-izing 2], consisting of the substituent which has an aryl group is desirable.

[0014] Moreover, the substituent expressed as R during the above [-izing 1] or [-izing 2], Or the polymer which chooses the molecular weight of said polymer, and repeats the above [-izing 1] or [-izing 2], and it has as a unit If it carries out as [be / to the solvent which makes insoluble the electronic transportability matter which constitutes said electronic transportation layer / meltable] while it is meltable to the solvent which makes insoluble the electron hole transportability matter which constitutes said electron hole transportation layer, the above-mentioned organic electroluminescent element can be formed with a wet method.

[0015] In this case, in order to make into or less more than 8.9(cal/cm3) 1/213.0(cal/cm3) 1/2 the solubility parameter range [in / for convenience / the room temperature of said electron hole transportability matter] of selection of the solvent used with a wet method As a solvent which makes said polymer meltable, the solubility parameter in a room temperature belongs to more than 7.0(cal/cm3) 1/28.9(cal/cm3) 1 / less than two range. N pentane, a hexane, a heptane, n-octane, n-nonane, n-Deccan, 1-decene, a methylcyclohexane, a cyclohexane, 1-chloropropane, tetrachloromethane, ethylbenzene, or meta xylene can be used.

[0016] Moreover, while making into or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 the solubility parameter range [in / for convenience / the room temperature of said electron hole transportability matter] of selection of the solvent used with a wet method In order to carry out to or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2, the solubility parameter range in the room temperature of said electronic transportability matter As a solvent which makes said polymer

meltable, the solubility parameter in a room temperature can use tetrachloromethane, ethylbenzene, or meta xylene etc. which belongs to 8.9(cal/cm3) 1 / less than two range more greatly than 8.4(cal/cm3) 1/2.

[0017] Similarly, while making the solubility parameter range in the room temperature of said electron hole transportability matter into or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 In order to carry out to or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2, the solubility parameter range in the room temperature of said electronic transportability matter As a solvent which makes said polymer meltable, the solubility parameter in a room temperature belongs to 13.0(cal/cm3) 1 / two or less range more greatly than 10.0(cal/cm3) 1/2. alpha BUROMO naphthalene, nitroethane, an acetonitrile, or nitromethane can be used.

[0018] Furthermore, while making the solubility parameter range in the room temperature of said electron hole transportability matter into or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 In order to carry out to or less more than 11.5(cal/cm3) 1/213.0(cal/cm3) 1/2, the solubility parameter range in the room temperature of said electronic transportability matter As a solvent which makes said polymer meltable, the solubility parameter in a room temperature can use alpha BUROMO naphthalene or nitroethane etc. which belongs to 11.5(cal/cm3) 1 / less than two range more greatly than 10.0(cal/cm3) 1/2.

[0019] Moreover, if the compound shown by the general formula [-izing 3] or [-izing 4] as a doping agent which emits phosphorescence is used to the host agent using the polymer which has the repeat unit expressed with the above [-izing 1] or [-izing 2] as mentioned above, formation of the organic electroluminescent element which may emit light by phosphorescence will be attained.

[0020]

[Embodiment of the Invention] <u>Drawing 1</u> shows the basic structure of an organic electroluminescent element of having the component structure by which the laminating was carried out to the multilayer for the purpose of improvement in luminous efficiency. The component structure of an organic electroluminescent element is a multilayer laminated structure from which the laminating of each thin film layer of the electron hole transportation layer 20, the electronic block layer 30, a luminous layer 40, the electron hole block layer 50, and the electronic transportation layer 60 is carried out one by one, and it changes to the anode plate layer 10 formed on the substrate outside drawing between the two-electrodes layers of the anode plate layer 10 and catholyte 70, and a luminous layer 40 has the luminous layer doping agent 41 and the luminous layer host agent 42, and is constituted.

[0021] In the component structure shown by <u>drawing 1</u>, the transparent conductive matter formed in a transparence insulation base material like a glass substrate is used, and conductive polymers, such as inorganic conductivity matter, such as metals, such as conductive oxides, such as tin oxide, indium oxide, and a tin oxide indium (ITO), or gold, silver, and chromium, iodine copper, and copper sulfide, the poly thiophene, polypyrrole, and the poly aniline, etc. can be used for the anode plate layer 10 as the ingredient.

[0022] Moreover, when catholyte 70 is formed with the transparent ingredient, the anode plate layer 10 may be formed with an opaque ingredient.

[0023] Moreover, in the component structure shown by <u>drawing 1</u>, a simple substance or alloys, such as a lithium, sodium, a potassium, a rubidium, caesium, magnesium, calcium, strontium, barium, boron, aluminum, copper, silver, and gold, can be used for catholyte 70. Furthermore, they can also be used, carrying out the laminating of these. Moreover, it can also form with wet by the tetrahydro aluminate. In this case, especially as a tetrahydro aluminate used for catholyte

70, a lithium aluminum hydride, a hydrogenation aluminum potassium, hydrogenation aluminum magnesium, and hydrogenation aluminum calcium can be mentioned. In this, the lithium aluminum hydride is especially excellent in the electron injection nature to an electronic transportation layer.

[0024] Moreover, the electron hole transportation layer 20 is a layer for conveying the electron hole poured in from the anode plate layer 10, and is an organic layer containing the electron hole transportability organic substance. CBP, [0025] which are shown in [-izing 5] as an example of the electron hole transportation **** organic substance

[Formula 6]

[0026] Pori (N-vinylcarbazole) (it is also called Following PVK.) shown in [-izing 6], [0027] [Formula 7]

[0028] It is desirable to consist of macromolecules, such as Pori (Para-phenylenevinylene) shown in [-izing 7]. Or [0029]

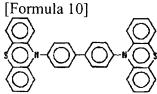
[Formula 8]

[0030] N shown in [-izing 8], N'-diphenyl-N, the N'-screw (3-methylphenyl) -1, the 1'-biphenyl -4, 4'-diamine (it is also called Following TPD.), [0031]

[Formula 9]

[0032] N shown in [-izing 9], N'-diphenyl-N, N'-screw (1-naphthyl) - 1, the 1'-biphenyl -4, 4'-diamine (it is also called Following NPD.)

[0033]



[0034] The 4 and 4'-bis(10-phenothiazinyl) biphenyl shown in [-izing 10], [0035]

[0036] The kappa phthalocyanine shown in [-izing 11] is mentioned.

[0037] Moreover, the electronic block layer 30 is a layer for blocking an electron, in order that the electron poured in to the luminous layer 40 may protect passing to the anode plate layer 10 as it is from catholyte 70, and it consists of electronic block nature matter. As electronic block nature matter, it is the compound shown by [-izing 6], [-izing 7], [-izing 8], or [-izing 10], and [0038], for example.

[Formula 12]

[0039] 2, 4, 6-triphenyl which are shown in [-izing 12] - 1, 3, 5-triazole, [0040]

[Formula 13]

[0041] FUROREN shown in [-izing 13] can be mentioned.

[0042] Moreover, since a luminous layer 40 has a doping agent 41 and the host agent 42 and homogeneity is made to distribute these doping agents 41 and the host agent 42, it is also possible to add a binder macromolecule. The host agent 42 is CBP which is the matter which activation is carried out and acts as an exciton in case the electron hole and electron which were poured in, respectively recombine in a luminous layer 40 from the anode plate layer 10 and catholyte 70, and is shown in [-izing 5], and [0043]. [Formula 14]

[0044] 1, 3, 5-Tori (5-(4-tert-buthylphenyl)- 1, 3, 4-OKISA diazole) phenyl (OXD-1 is said below.), [0045] which are shown in [-izing 14]

[Formula 15]



[0046] N-phenyl poly carbazole shown by [-izing 15] [0047]

[Formula 16]

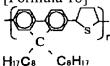


[0048] (R shows hydrogen, an aliphatic hydrocarbon radical, an aromatic hydrocarbon radical, a ether group, or a heterocycle radical among a general formula [-izing 16].) The poly fluorene compound which repeats a general formula [-izing 16] and it has as a unit, for example, [0049] [Formula 17]



[0050] The dinormal octyl poly fluorene shown by [-izing 17] [0051]

[Formula 18]



[0052] The dinormal octyl fluorene / thiophene copolymer shown by [-izing 18] can be mentioned.

[0053] On the other hand, the doping agent 41 of a luminous layer 40 is matter which emits phosphorescence with the excitation energy of the exciton slack host agent 42, and is [0054]. [Formula 19]



[0055] The Tori (2 phenyl pyridine) iridium complex (it is also called the following Ir(ppy) 3.) shown in [-izing 19], [0056]

[Formula 20]



[0057]

[Formula 21]



[0058]

[Formula 22]



[0059]

[Formula 23]



[0060]

[Formula 24]



[0061]

[Formula 25]



[0062] (The inside of a chemical formula [-izing 25] and acac are [0063].)

[Formula 26]

[0064] The functional group shown by [-izing 26] is shown. the following -- the same in the chemical formula shown in [-izing 27] thru/or [-izing 31].

[0065]



[0066]

[Formula 28]



[0067] [Formula 29]



[0068] [Formula 30]



[0069] [Formula 31]



[0070] The iridium complex compound shown by [-izing 19] thru/or [-izing 25], [-izing 27], or [-izing 31], [0071]

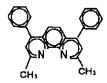
[Formula 32]

[0072] The 2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, and 18-OKUTA ethyl-21 platinum [H and 23H-] (II) porphin (it is also called Following PtOEP.) shown in [-izing 32] can be mentioned.

[0073] As an example of the binder giant molecule which can be added to a luminous layer 40, moreover, polystyrene, A polyvinyl biphenyl, a polyvinyl phenanthrene, a polyvinyl anthracene, Polyvinyl perylene, Pori (ethylene-co-vinyl acetate), cis of polybutadiene, trans, Pori (2-vinyl naphthalene), A polyvinyl pyrrolidone, polystyrene, Pori (methyl methacrylate), Pori (vinyl acetate), Pori (2-vinylpyridine-co-styrene), The poly acenaphthylene, Pori (acrylonitrile-co-butadiene), Pori (benzyl methacrylate), Pori (vinyltoluene), Pori (styrene-co-acrylonitrile), Pori (4-vinyl biphenyl), a polyethylene glycol, etc. are mentioned.

[0074] Moreover, the electron hole block layer 50 is a layer for blocking an electron hole, in order that the electron hole poured in to the luminous layer 40 may protect passing to catholyte 70 as it is from the anode plate layer 10, and it consists of electron hole block nature matter. As electron hole block nature matter, it is [0075], for example.

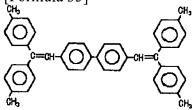
[Formula 33]



[0076] The BASOKYU pro in (it is also called Following BCP.) shown in [-izing 33], [0077] [Formula 34]

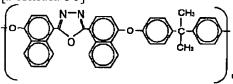
[0078] The 4 and 4'-bis(1 and 1-diphenyl ethenyl) biphenyl (DPVBi is also told to below.) shown in [-izing 34], [0079]

[Formula 35]



[0080] The 4 and 4'-bis(1 and 1-bis(4-methylphenyl) ethenyl) biphenyl (it is also called Following DTVBi.) shown in [-izing 35], [0081]

[Formula 36]

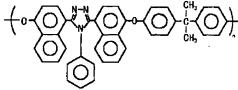


[0082]

[Formula 37]

[0083] An OKISA diazole system high molecular compound as shown in [-izing 36] and [-izing 37], [0084]

[Formula 38]



[Formula 39]

[0086] A triazole system high molecular compound as shown by [-izing 38] and [-izing 39] etc. can be mentioned.

[0087] Moreover, the electronic transportation layer 60 is a layer for conveying the electron poured in from catholyte 70, and contains an electronic transportation agent. The configuration which consists of electronic transportability macromolecules and contains an electronic transportability low-molecular further is possible for an electronic transportation agent. [0088] OXD-1, [0089] which are shown in [-izing 14] as an electronic transportability low-molecular example here

[Formula 40]

[0090] [-izing 40] shown 2-(4-biphenylyl)-5-(4-tert-buthylphenyl)- 1, 3, and 4-OKISA diazole -- (-- it is also called Following PBD. [) -- 0091]

[Formula 41]



[0092] A triazole system high molecular compound as shown by the OKISA diazole system high molecular compound as shown in [-izing 36] and [-izing 37], [-izing 38], and [-izing 39] as the tris(8-hydroxyquinolinate)aluminium (it is also called the following Alq3.) shown in [-izing 41] and an example of an electronic transportability giant molecule etc. can be mentioned. [0093] The component structure shown in drawing 2 thru/or drawing 4 is possible as what added modification to the basic structure of the organic electroluminescent element shown in drawing 1 because of the further improvement in luminous efficiency, or the simplification of structure. [0094] The component structure of the organic electroluminescent element shown by drawing 2 shows the 1st operation gestalt of the organic electroluminescent element of this invention. Although the electronic block layer 30 and the electron hole block layer 50 of drawing 1 are omitted, in drawing 2, an electronic block effect can be given to the electron hole transportation layer 20, an electron hole block effect can be given to the electronic layer 60, respectively, and luminous efficiency can be maintained.

[0095] The component structure of the organic electroluminescent element shown by <u>drawing 3</u> omits the electronic block layer 30 in the component structure shown by <u>drawing 1</u>. [0096] From the component structure shown by drawing 1, the component structure of the

organic electroluminescent element shown by <u>drawing 4</u> omits the electronic block layer 30 and the electron hole block layer 50, and adds the electronic injection layer 61 constituted by the electron injectional matter between catholyte 70 and the electronic transportation layer 60. [0097] As electron injectional matter, it is lithium fluoride, lithium oxide, and [0098], for example.

[Formula 42]



[0099] 8-hydroxyquinolinate lithium (it is also called Following Liq.) shown by [-izing 42] is mentioned.

[0100] Next, the manufacture approach of an organic electroluminescent element is explained for drawing 2 as 1st operation gestalt of this invention.

[0101] First, the anode plate layer 10 is formed in vacuum deposition or a spatter on the transparence insulation base material used as a substrate (not shown), for example, a glass substrate.

[0102] Next, the 1st solution which dissolved or distributed an electron hole transportability macromolecule or an electron hole transportability low-molecular to the solvent is created. Here, it is also possible to dissolve or distribute a binder macromolecule further in the 1st solution. And the electron hole transportation layer 20 is formed on the anode plate layer 10 with the wet method using the 1st solution.

[0103] Furthermore, the 2nd solution which dissolved or distributed the doping agent 41 and the host agent 42 of a luminous layer 40 to the solvent is created. Here, it is also possible to dissolve or distribute a binder macromolecule further in the 2nd solution. And a luminous layer 40 is formed on the above-mentioned electron hole transportation layer 20 with the wet method using the 2nd solution.

[0104] Furthermore, the 3rd solution which dissolved or distributed an electronic transportability macromolecule or an electronic transportability low-molecular to the solvent is created. Here, it is also possible to dissolve or distribute a binder macromolecule further in the 3rd solution. With the wet method using the 3rd solution, the electronic transportation layer 60 is formed on a luminous layer 40.

[0105] Moreover, the solubility parameter of the solvent used for the 2nd solution has the value which shows the outside of the meltable range to the matter (electron hole transportability matter which consists of an electron hole transportability macromolecule or an electron hole transportability low-molecular) contained in the electron hole transportation layer 20 in the membrane formation temperature of a luminous layer 40. In formation of the luminous layer 40 by the wet method using such a solvent, the organic substance contained in the lower layer electron hole transportation layer 20 is not dissolved.

[0106] Moreover, the solubility parameter of the solvent used for the 3rd solution has the value which shows the outside of the meltable range to the matter (luminescent matter, a binder macromolecule, etc. which consist of a doping agent 41 or the host agent 42) contained in a luminous layer 40 in the membrane formation temperature of the electronic transportation layer 60. In formation of the electronic transportation layer 60 by the wet method using such a solvent, the organic substance contained in the lower layer luminous layer 40 is not dissolved.

[0107] It becomes easy to choose the solvent used for the 1st solution as the solubility parameter

range of the electron hole transportability matter contained in the electron hole transportation layer 20 is or less more than 8.9(cal/cm3) 1/213.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature here. [0108] By the way, the polymer which repeats [-izing 1] and it has as a unit can adjust the solubility parameter range by choosing R under [-izing 1], and the molecular weight of a polymer. Therefore, the solubility parameter in the room temperature of the polymer which adjusts in this way, and repeats [-izing 1], and it has as a unit As a solvent which makes out of range [or less / above / more than 8.9(cal/cm3) 1/213.0(cal/cm3) 1/2], i.e., more than 7.0(cal/cm3) 1/28.9(cal/cm3) 1 / less than two range, and is used for the 2nd solution If the solvent belonging to this solubility parameter range is used, a luminous layer 40 can be formed without dissolving the electron hole transportability matter of the electron hole transportation layer 20. In addition, the electronic transportation layer 60 which adjoins as the upper layer of a luminous layer 40 in this case can be formed with dry process, such as vacuum evaporationo. [0109] as the example of the solvent used for the 2nd solution of the above -- n pentane (the solubility parameter in a room temperature --) the following -- the same : -- 7.05(cal/cm3) 1/2, and a hexane (7.30(cal/cm3) 1/2) -- A heptane (7.45(cal/cm3) 1/2), n-octane (7.54(cal/cm3) 1/2), n-nonane (7.64(cal/cm3) 1/2), n-Deccan (7.74 (cal/cm3) 1/2), 1-decene (7.85(cal/cm3) 1/2), a methylcyclohexane (8.13(cal/cm3) 1/2), A cyclohexane (8.20(cal/cm3) 1/2), 1-chloropropane (8.30(cal/cm3) 1/2), Tetrachloromethane (8.60(cal/cm3) 1/2), ethylbenzene (8.70(cal/cm3) 1/2), meta xylene (8.80(cal/cm3) 1/2), etc. are mentioned. Of course, it is not limited to the solvent illustrated above that the solvent which can use the 2nd solution should just be a solvent with which the solubility parameter in a room temperature belongs to more than 7.0(cal/cm3) 1/28.9(cal/cm3) 1 / less than two range.

[0110] Become easy to choose the solvent used for the 1st solution as the solubility parameter range of the electron hole transportability matter contained in the electron hole transportation layer 20 is or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature here. Moreover, further It becomes easy to choose the solvent used for the 3rd solution as the solubility parameter range of the electronic transportability matter contained in the electronic transportation layer 60 is or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2 in a room temperature.

[0111] Then, the solubility parameter in the room temperature of the polymer which adjusts the solubility parameter range, and repeats [-izing 1], and it has as a unit by choosing R under [-izing 1] of the polymer which repeats [-izing 1] and it has as a unit like the above, and molecular weight Out of range [or less / above / or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2, and / more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2], Namely, it considers as 13.0(cal/cm3) 1 / two or less range more greatly [it is larger than 8.4(cal/cm3) 1/2, and] than less than 8.9(cal/cm3) 1/2, and 10.0(cal/cm3) 1/2. If the solvent belonging to these solubility parameter range is used as a solvent used for the 2nd solution, the electronic transportation layer 60 can be formed without being able to form a luminous layer 40, without dissolving the electron hole transportability matter of the electron hole transportation layer 20, and dissolving the luminescent matter of a luminous layer 40.

[0112] as the example of the solvent used for the 2nd solution of the above in this case -- tetrachloromethane (the solubility parameter in a room temperature --) the following -- the same: -- 8.60(cal/cm3) 1/2, and ethylbenzene (8.70(cal/cm3) 1/2) -- meta xylene (8.80(cal/cm3) 1/2, and alpha BUROMO naphthalene (10.60(cal/cm3) 1/2) --) Nitroethane (11.10(cal/cm3) 1/2), an acetonitrile (11.80(cal/cm3) 1/2), nitromethane (12.70(cal/cm3) 1/2), etc. are mentioned. Of course, it is not limited to the solvent illustrated above that the solvent which can use the 2nd

solution should just be a solvent with the larger solubility parameter in a room temperature with which it belongs to 13.0(cal/cm3) 1 / two or less range more greatly than less than 8.9(cal/cm3) 1/2, and 10.0(cal/cm3) 1/2 than 8.4(cal/cm3) 1/2.

[0113] Become easy to choose the solvent used for the 1st solution apart from the above as the solubility parameter range of the electron hole transportability matter contained in the electron hole transportation layer 20 is or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature. Moreover, further It becomes easy to choose the solvent used for the 3rd solution as the solubility parameter range of the electronic transportability matter contained in the electronic transportation layer 60 is or less more than 11.5(cal/cm3) 1/213.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature.

[0114] Then, the solubility parameter in the room temperature of the polymer which adjusts the solubility parameter range, and repeats [-izing 1], and it has as a unit by choosing R under [-izing 1] of the polymer which repeats [-izing 1] and it has as a unit like the above, and molecular weight Out of range [or less / above / or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2, and / more than 11.5(cal/cm3) 1/213.0(cal/cm3) 1/2], for example, as a solvent which makes 11.5(cal/cm3) 1 / less than two range more greatly than 10.0(cal/cm3) 1/2, and is used for the 2nd solution If the solvent belonging to these solubility parameter range is used, the electronic transportation layer 60 can be formed without being able to form a luminous layer 40, without dissolving the electron hole transportability matter of the electron hole transportation layer 20, and dissolving the luminescent matter of a luminous layer 40.

[0115] alpha BUROMO naphthalene (it is [the solubility parameter in a room temperature and] the :10.60(cal/cm3) 1/2 below), nitroethane (11.10(cal/cm3) 1/2), etc. are mentioned as an example of the solvent used for the 2nd solution of the above in this case. [same] Of course, it is not limited to the solvent illustrated above that the solvent which can use the 2nd solution should just be a solvent with which the solubility parameter in a room temperature belongs to 11.5(cal/cm3) 1 / less than two range more greatly than 10.0(cal/cm3) 1/2.

[0116] In addition, the solvent which has or less 7.0(cal/cm3) 1/2, and 13.0(cal/cm3) 1 / two or more solubility parameters in a room temperature hardly exists about the above-mentioned numerical range.

[0117] At this time, when the solvent used for the above-mentioned 1st thru/or the 3rd above-mentioned solution evaporates by the air drying, the electron hole transportation layer 20, a luminous layer 40, and the electronic transportation layer 60 are formed. In this case, it is not necessary to process heating, the polymerization by the exposure of ultraviolet rays, hardening, etc., therefore a production process is easy and can raise productive efficiency.

[0118] The usual coating methods, such as for example, the casting method, the blade coat method, a dip coating method, a spin coat method, a spray coating method, a roll coating method, and an ink jet coating method, are included in the wet method used by this invention. [0119] Finally, vacuum deposition etc. is used, catholyte 70 is formed on the electronic transportation layer 60, and the organic electroluminescent element of this invention is obtained. [0120] In addition, solubility parameter SP is defined by SP={(deltaH-RT) /V}1/2 in the absolute temperature T of the liquid of molar-heat-of-vaporization deltaH and molar volume V. However, SP is a solubility parameter (unit: (cal/cm3) 1/2) among the above-mentioned formula, deltaH is the molar heat of vaporization (unit: cal/mol), R is a gas constant (unit: cal/(mol-K)), T is absolute temperature (unit: K), and V is molar volume (unit: cm3/mol).

[0121] Moreover, <u>drawing 3</u> is the 2nd operation gestalt of the organic electroluminescent element of this invention. Before formation of the electronic transportation layer 60 among the

production process of the component structure shown by above-mentioned <u>drawing 2</u> Pass the production process which carries out sequential formation of the electronic transportation layer 60 and the catholyte 70 like above-mentioned <u>drawing 2</u> on this electron hole block layer 50 after forming electron hole block nature matter, such as PBD shown in [-izing 40], with a wet method and forming the electron hole block layer 50 on a luminous layer 40.

[0122] Moreover, <u>drawing 4</u> should be the 3rd operation gestalt of the organic electroluminescent element of this invention, and among the production process of the component structure shown by above-mentioned <u>drawing 2</u>, after it forms electron injectional matter, such as lithium fluoride, with vacuum deposition and forms an electronic injection layer 61 on the electronic transportation layer 60 before formation of catholyte 70, pass the production process which forms catholyte 70 like above-mentioned <u>drawing 2</u> on this electronic injection layer 61.

[0123]

[Example] [Example 1] 6mg was dissolved by 1ml 1,2-dichloroethane as PVK shown by the [-izing 6] of the polystyrene equivalent weight normal (henceforth molecular weight) 1,100,000 measured with the gel par EISHON chromatography, and the solution 1 was created. [0124] 0.2mg was dissolved in xylene 1ml as Ir (ppy)3 shown by 5mg and [-izing 19] as a dinormal octyl poly fluorene (molecular weight 60,000) shown by [-izing 17], and the solution 2 was created.

- [0125] The ionization potential and the electron affinity of the dinormal octyl poly fluorene used as a host agent were with 5.8eV and 2.2eV, respectively.
- [0126] That is, a host agent slack dinormal octyl poly fluorene has a larger ionization potential value than the doping agent slack Ir(ppy) 3 (5.3eV), and has an electron affinity smaller than Ir (ppy)3 (3.04eV).
- [0127] The electron hole transportation layer of 50nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 1 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on the ITO substrate (below Marketing ITO, and :200hms / by Asahi Glass Co., Ltd., and **) which performed oxygen plasma treatment.
- [0128] Furthermore, the luminous layer of 20nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 2 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on an electron hole transportation layer.
- [0129] Under degree of vacuum 10-3Pa, Alq3 shown by [-izing 41] as an electronic transportation layer was formed to 50nm thickness by evaporation rate 1 nm/sec, vapor codeposition of aluminum and the lithium was carried out to the last by evaporation rate 1 nm/sec so that a lithium might become 1%, cathode was formed in it with the vacuum evaporation system, and the component structure shown in <u>drawing 2</u> was created. [0130] At this time, green luminescence of 500 cds/m2 (it is the same brightness and the following) was obtained by 7V (it is the same driver voltage and the following) and 1 mA/s:
- following) was obtained by 7V (it is the same driver voltage and the following) and 1 mA/cm2 (it is the same current density and the following).
- [0131] A solution 2 in [the example 1 of a comparison], and the [example 1] as OXD-1 shown by [-izing 14] 2.5mg is dissolved in xylene 1ml as 1.25mg and Ir (ppy)3 as CBP shown by 11.25mg and [-izing 5] as a polyvinyl biphenyl of 0.17mg and the binder giant-molecule slack molecular weight 100,000. The component structure shown in drawing 2 like [an example 1] was created except having created the solution 2. At this time, green luminescence of 480 cd/m2 was obtained by 9V and 1 mA/cm2.
- [0132] [Example 2] [an example 7] [Example 2 of a comparison] Except having used for

following [table 1] the substituent shown as R instead of the octyl radical in the dinormal octyl poly fluorene shown by - [the example 3 of a comparison], and [-izing 17], when the component structure shown in drawing 2 like [an example 1] was created, luminescence of the luminous efficiency shown in [Table 1] was obtained. All the molecular weight of the poly fluorene compound used at this time was 60,000.

[0133]

[Table 1]

実施例	R	1mA/c㎡での性能	
天心75		電圧 (V)	輝度(cd/m)
2	OC8H17	7. 2	440
3	C ₈ H ₅ C ₈ H ₁₇	7. 0	460
4	C ₈ H ₄ 0CH ₃	7. 0	470
5	C ₈ H ₁₆ NH ₂	7. 2	490
6	C 15 H 31	8. 0	500
比較例2	C 1 8 H 3 3	8. 5	500
7	OC15H31	8. 2	500
比較例3	OC18H33	8. 7	500

[0134] Driver voltage goes up, so that the carbon number of the substituent used as R increases from the above [Table 1]. As for the carbon number of the alkyl group permuted as R, or an alkoxyl group, 15 or less are desirable.

[0135] [Example 8] - [an example 14] [Example 4 of a comparison] instead of the dinormal octyl poly fluorene shown in - [the example 5 of a comparison], and [-izing 17] Except having used what has the substituent shown as R all over the following [table 2] as a poly carbazole compound which has the repeat unit shown in [-izing 2], when the component structure shown in drawing 2 like [an example 1] was created, luminescence of the luminous efficiency shown in [Table 2] was obtained. All the molecular weight of the poly carbazole compound used at this time was 60,000.

[0136]

[Table 2]

実施例	R	1 mA/cmでの性能	
天旭列	rt.	電圧 (V)	輝度(cd/m)
8	C ₈ H ₁₇	7. 5	440
9	OC ₈ H ₁₇	7. 5	460
10	C ₈ H ₅	_ 6.8	470
11	C ₈ H ₄ CH ₃	6. 8	490
1 2	C _B H ₁₆ NH ₂	7. 0	520
1 3	C 15 H 31	8. 2	500
比較例4	C 1 6 H 3 3	8. 7	500
1 4	OC15H31	8. 4	500
比較例5	OC ₁₈ H ₃₈	8. 9	500

[0137] From the above [Table 2], driver voltage goes up, so that the carbon number of R increases. As for the carbon number of the alkyl group permuted as R, or an alkoxyl group, 15 or less are desirable.

[0138] [Example 15] It changed to Ir (ppy)3 as a - [example 26] doping agent, and except having used the compound shown in following [table 3], when the component structure shown in drawing 2 like [an example 1] was created, luminescence of the luminous efficiency shown in [Table 3] was obtained.

[0139]

[Table 3]

実施例	化合物	m 1 m A / c m での性能		長
天肥例	16 170	電圧(V)	輝度 (cd/m)	(nm)
1 5	[化20]	7. 1	450	545
16	[化21]	7. 1	290	563
17	[化22]	7. 2	550	525
18	[化23]	6. 9	360	555
19	[化24]	6. 9	50	608
20	[化25]	7. 0	510	516
2 1	[化27]	7. 1	450	545
22	[化28]	7. 1	280	563
23	[化29]	6. 9	540	525
24	[化30]	7. 1	360	555
25	[化31]	7. 0	40	608
26	[化32]	6. 8	15	647

[0140] The component structure shown in <u>drawing 2</u> like [an example 1] was created except having changed to Alq3 used for the [example 27] electronic transportation layer, and having used OXD-1. At this time, green luminescence of 500 cd/m2 was obtained by 7.5V and 1 mA/cm2.

[0141] The component structure shown in <u>drawing 3</u> like [an example 1] was created except having formed BCP shown in [-izing 33] as an electron hole block layer between a [example 28] luminous layer and an electronic transportation layer to 6nm thickness by evaporation rate 0.1 nm/sec with vacuum deposition. At this time, green luminescence of 520 cd/m2 was obtained by 7.2V and 1 mA/cm2.

[0142] The component structure shown in <u>drawing 4</u> like [an example 1] was created except having formed lithium fluoride by evaporation rate 0.1 nm/sec with vacuum deposition as an electronic injection layer between a [example 29] electronic transportation layer and cathode at 5nm thickness, and having used aluminum for cathode.

[0143] At this time, green luminescence of 500 cd/m2 was obtained by 6.7V and 1 mA/cm2. [0144] The component structure shown in <u>drawing 2</u> like [an example 1] was created except having changed the ingredient of a [example 30] electron hole transportation layer to N-phenyl poly carbazole (molecular weight 60,000) shown in [-izing 15] from PVK. At this time, green luminescence of 500 cd/m2 was obtained by 5.8V and 1 mA/cm2.

[0145] PVK6mg of the [example 31] molecular weight 1,100,000 was dissolved by 1ml 1,2-dichloroethane, and the solution 1 was created. 0.2mg was dissolved in xylene 1ml as 5mg and Ir (ppy)3 as a dinormal octyl poly fluorene (molecular weight 1,000,000) shown by [-izing 17], and the solution 2 was created.

[0146] Polystyrene 2.5ml of molecular weight 50,000 was dissolved in cyclohexane 1ml as 2.5mg and a binder giant molecule as PBD shown by [-izing 40], and the solution 3 was created. [0147] The electron hole transportation layer of 50nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 1 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on the ITO substrate (below Marketing ITO, and :200hms / by Asahi Glass Co., Ltd., and **) which performed oxygen plasma treatment.

[0148] Furthermore, the luminous layer of 20nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 2 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on an electron hole transportation layer.

[0149] Furthermore, the electronic transportation layer of 50nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 3 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on a luminous layer.

[0150] The component structure which carries out vapor codeposition by evaporation rate 1

nm/sec so that a lithium may become 1% about aluminum and a lithium under degree of vacuum 10-3Pa, forms cathode in the last with a vacuum evaporation system, and is shown in <u>drawing 2</u> was created.

[0151] At this time, green luminescence of 480 cd/m2 was obtained by 7.8V and 1 mA/cm2. [0152] [Example 32] The component structure shown in <u>drawing 2</u> like [an example 31] was created except having dissolved N-phenyl poly carbazole (molecular weight 10,000) 5mg shown by [-izing 15] in xylene 1ml, and having created the solution 2. At this time, they are 460 cd/m2 at 8.2V and 1 mA/cm2. Green luminescence was obtained.

[0153] [Example 33] [-izing 18] The component structure shown in <u>drawing 2</u> like [an example 32] was created except having dissolved 5mg in xylene 1ml as the dinormal octyl fluorene / a thiophene copolymer (molecular weight 60,000) shown, and having created the solution 2. [0154] At this time, green luminescence of 460 cd/m2 was obtained by 7.5V and 1 mA/cm2. [0155] [Example 34] [-izing 18] The component structure shown in <u>drawing 2</u> like [an example 33] was created except having dissolved 0.17mg in xylene 1ml as 5mg and Ir (ppy)3 as the dinormal octyl fluorene / a thiophene copolymer (molecular weight 60,000) shown, and having created the solution 2. At this time, green luminescence of 460 cd/m2 was obtained by 4.5V and 1 mA/cm2.

[0156] The dissolution range of the solubility parameter display of the poly fluorene compound which made R in the repeat unit shown by [the example 35] and [-izing 1] the alkyl (-CnH2n+1) of a straight chain was measured.

[0157] The measuring method created the test piece which carried out the laminating of the thin film which has predetermined thickness on the substrate by the approach shown as [experiment 1] below, and performed it by measuring the dissolution range to the solvent which has a predetermined solubility parameter.

[0158] 6mg of polymers used as the ingredient of thin film layers, such as the electron hole transportation layer which constitutes a [experiment 1] organic electroluminescent element, an electronic block layer, a luminous layer, an electron hole block layer, an electronic transportation layer, and an electronic injection layer, is dissolved in ethylbenzene 1ml, and a solution is created. On the ITO substrate (Asahi Glass [Co., Ltd.] make: below 20ohms / **) of marketing which performed oxygen plasma treatment, the spin coat of this solution is carried out for 1 second by rotational frequency 1500rpm, and a 50nm substrate with a thin film is created, and it considers as a test piece.

[0159] [Table 4]

溶媒名	溶解度 パラメータ
n-ペンタン	7. 05
ヘキサン	7. 30
ヘプタン	7. 45
n-オクタン	7. 54
n-ノナン	7. 64
nーデカン	7. 74
1-デセン	7. 85
メチルシクロヘキサン	8. 13
シクロヘキサン	8. 20
1-クロロプロパン	8. 30
テトラクロロメタン	8. 60
エチルベンゼン	8. 70
m-キシレン	8. 80
トルエン	8. 90
トリクロロメタン	9 . 10
ベンゼン	9. 20
トリクロロエチレン	9. 30
クロロベンゼン	9. 60
1.2-ジクロロエタン	9. 70
ブロモベンゼン	9. 90
0-ジクロロペンゼン	10.00
αプロモナフタリン	10. 60
ニトロエタン	11. 10
アセトニトリル	11. 80
ニトロメタン	12. 70

[0160] As the solvent which has the solubility parameter shown in [Table 4] is prepared for the ascending order of these solubility parameter value, and is shown in <u>drawing 5</u> (a) and <u>drawing 5</u> (b), and a test piece 3 is made immersed for 10 seconds, respectively and is shown in the beaker 2 filled with those solvents 1 after that at <u>drawing 5</u> (c), it checks visually whether the test piece 3 was taken out and the thin film has dissolved.

[0161] The minimum value and maximum are defined as the dissolution range of a test piece among the solubility parameters of the solvent which a thin film dissolves.

[0162] It carried out by the object of the molecular weight 100,000 of the polymer used at this time. The measurement result of the dissolution range is shown in following [table 5]. [0163]

[Table 5]

	r	
n		範囲
- "	上限	下限
5	8. 70	7. 85
6	9. 10	7. 80
7	9. 30	8. 13
8	9. 60	8. 20
9	9. 90	8, 30
10	10.00	8. 30
11	10.00	8. 30
12	10.60	8. 30
13	10.60	8. 60
14	11. 10	8. 60
15	11. 10	8. 60

[0164] It turns out that the dissolution range can be adjusted with the carbon number of the alkyl group used as R during [-izing 1] from [Table 5].

[0165] Become easy to choose the solvent used for membrane formation of an electron hole transportation layer at this time as the solubility parameter range of the electron hole

transportability matter contained in an electron hole transportation layer is or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature. Furthermore, it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of an electronic transportation layer as the solubility parameter range of the electronic transportability matter contained in an electronic transportation layer is or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2 in a room temperature. [0166] Then, PVK6mg of molecular weight 1,100,000 was dissolved by 1ml 1,2-dichloroethane, and the solution 1 was created.

[0167] 0.17mg was dissolved in ethylbenzene 1ml as 5mg and Ir (ppy)3 as a poly fluorene compound of the molecular weight 100,000 which made R in the repeat unit shown by [-izing 1] the alkyl (-CnH2n+1) of a straight chain, and the solution 2 was created.

[0168] Polystyrene 2.5ml of molecular weight 50,000 was dissolved in cyclohexane 1ml as 2.5mg and a binder giant molecule as PBD, and the solution 3 was created.

[0169] The electron hole transportation layer of 50nm thickness was formed by carrying out the spin coat of the solution 1 for 1 second by rotational frequency 1500rpm on the ITO substrate (below Marketing ITO, and :200hms / by Asahi Glass Co., Ltd., and **) which performed oxygen plasma treatment. The dissolution range of this electron hole transportation layer was 8.9-10.0(cal/cm3) 1/2.

[0170] Furthermore, the luminous layer of 20nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 2 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on an electron hole transportation layer.

[0171] Furthermore, when the component structure which carries out vapor codeposition of aluminum and the lithium by evaporation rate 1 nm/sec so that a lithium may become 1%, forms cathode in the last which obtained the electronic transportation layer of 50nm thickness by carrying out the spin coat of the solution 3 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on a luminous layer, and is shown in <u>drawing 2</u> was created, luminescence of the luminous efficiency shown in following [table 6] was obtained.

[Table 6]

	1 m A / c ㎡での性能		
n	電圧 (V)	輝度 (cd/m)	
5~8	素子作用	戊出来ず	
9	7. 8	480	
10	7. 8	480	
11	7. 8	490	
12	7. 9	490	
13	8. 0	500	
14	8. 2	500	
15	8. 4	500	

[0173] In N<=8, since a luminous layer dissolved at the time of electronic transportation layer membrane formation, the component was not able to be created.

[0174] Except having changed the solvent of the [example 36] solution 3 into alpha BUROMO naphthalene, when the component structure shown in <u>drawing 2</u> like [an example 35] was created, luminescence of the luminous efficiency shown in following [table 7] was obtained. [0175]

[Table 7]

	1 mA/c mでの性能	
n	電圧 (V)	輝度(cd/m)
5	7. 8	440
6	7. 8	450
7	7. 9	450
8	7. 9	450
9	8. 0	450
10	8. 0	460
11	8. 0	460
12~15	素子作成出来ず	

[0176] In N=12-15, since a luminous layer dissolved at the time of electronic transportation layer membrane formation, the component was not able to be created.

[0177] When the substituent shown as R during [-izing 1] according to [an example 35], and [an example 36] is an alkyl group, the dissolution range of the polymer which repeats [-izing 1] and it has in a unit can be adjusted, and it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of the electron hole transportation layer located in a lower layer, and the membrane formation of an electronic transportation layer located in the upper layer by choosing this alkyl group. And the laminating of the luminous layer and electron hole transportation layer which are constituted using the polymer which repeats [-izing 1] and it has in a unit, and the electronic transportation layer can be carried out with a wet method, and luminescence of the organic electroluminescent element of such structure is obtained.

[0178] The dissolution range of the solubility parameter display when setting up various molecular weight of the dinormal octyl poly fluorene which set to -C8H17 of a straight chain R in the repeat unit shown by [the example 37] and [-izing 1] was measured. When the measuring method was performed like [the experiment 1], the measurement result shown in following [table 8] was obtained.

[0179]

[Table 8]

分子量	溶解範囲	
	上限	下限
10, 000	10. 60	7. 85
60, 000	10.00	7. 85
100, 000	9. 60	8. 20
500, 000	9. 30	8. 60
1, 000, 000	9. 30	8. 60

[0180] It turns out that the dissolution range can be adjusted with the molecular weight of the polymer which repeats [-izing 1] by [Table 8] and it has in a unit.

[0181] Become easy to choose the solvent used for membrane formation of an electron hole transportation layer as the solubility parameter range of the electron hole transportability matter contained in an electron hole transportation layer is or less more than 8.9(cal/cm3)

1/210.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature here. Furthermore, it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of an electronic transportation layer as the solubility parameter range of the electronic transportability matter contained in an electronic transportation layer is or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2 in a room temperature.

[0182] Then, the dinormal octyl poly fluorene adjusted to the molecular weight shown above [Table 8] was used, and when the component structure shown in <u>drawing 2</u> like [an example 35] was created, luminescence of the luminous efficiency shown in following [table 9] was obtained. [0183]

[Table 9]

分子量	1mA/c㎡での性能	
カ丁里		輝度(cd/m)
10,000	素子作成不能	
60, 000		
100, 000		
500, 000	7. 80	480
1, 000, 000	7. 80	480

[0184] As a dinormal nonyl poly fluorene of the molecular weight 100,000 which set to -C9H19 of a straight chain R in the repeat unit shown by [the example 37] and [-izing 1] Except having dissolved in the solvent (1ml each) which shows 0.17mg to following [table 10] as 5mg and Ir (ppy)3, and having created the solution 2, when the component structure shown in drawing 2 like [an example 35] was created, luminescence of the luminous efficiency shown in [Table 10] was obtained.

[0185]

[Table 10]

溶媒名	溶解度	1 m A / c ㎡での性能	
7275.2	パラメータ	電圧(V)	輝度(cd/m)
1-クロロプロパン	8. 30	7. 8	450
テトラクロロメタン	8. 60	7. 8	460
エチルベンゼン	8. 70	7. 8	480
m-キシレン	8. 80	7. 8	480
トルエン	8. 90	索子作	成不能

[0186] Even if a solvent changes from [Table 10], it turns out that dispersion in brightness is only less than 10%.

[0187] This dissolution range can be adjusted and it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of the electron hole transportation layer located in a lower layer, and the membrane formation of an electronic transportation layer located in the upper layer by choosing the molecular weight of the polymer which repeats [-izing 1] and it has in a unit from [an example 36], and [an example 37] when the substituent shown as R during [-izing 1] is an alkyl group. And the laminating of the luminous layer and electron hole transportation layer which are constituted using the polymer which repeats [-izing 1] and it has in a unit, and the electronic transportation layer can be carried out with a wet method, and luminescence of the organic electroluminescent element of such structure is obtained.

[0188] The dissolution range of the solubility parameter of the poly carbazole compound generated considering R in the repeat unit shown in [an example 38] and [-izing 2] as alkyl (-CnH2n+1) of a straight chain was measured. The measuring method was performed by the same approach as [experiment 1]. When considered as the molecular weight 10,000 of the used poly carbazole compound, the measurement result shown in following [table 11] was obtained. [0189]

[Table 11]

	溶解範囲	
n	上限	下限
0	9. 2	8. 9
1	9. 3	8. 9
3	9. 7	8. 9
	9. 9	8. 9
4	10. 0	8. 9
5	10. 6	8.8
6	10. 6	8.8
7	10. 6	8. 7
8	11. 1	8. 7
9	11. 1	8.6
10	11. 1	8. 6
11	11. 8	8. 6
12	11. 8	8. 3
13	11. 8	8. 3
14	11. 8	8. 3
15	12. 7以上	8. 2

[0190] It turns out that the dissolution range can be adjusted with the carbon number of the alkyl group used as R during [-izing 2] from [Table 11].

[0191] Become easy to choose the solvent used for membrane formation of an electron hole transportation layer at this time as the solubility parameter range of the electron hole transportability matter contained in an electron hole transportation layer is or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature. Furthermore, it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of an electronic transportation layer as the solubility parameter range of the electronic transportability matter contained in an electronic transportation layer is or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2 in a room temperature. [0192] Here, 6mg was dissolved by 1ml 1,2-dichloroethane as PVK of molecular weight 1,100,000, and the solution 1 was created.

[0193] 0.17mg was dissolved in xylene 1ml as 5mg and Ir (ppy)3 as an N-alkyl poly carbazole compound of the molecular weight 10,000 which made R in the repeat unit shown by [-izing 2] the alkyl group (-CnH2n+1) of a straight chain, and the solution 2 was created.

[0194] Polystyrene 2.5ml of molecular weight 50,000 was dissolved in cyclohexane 1ml as 2.5mg and a binder giant molecule as PBD, and the solution 3 was created.

[0195] The electron hole transportation layer of 50nm thickness was formed by carrying out the spin coat of the solution 1 for 1 second by rotational frequency 1500rpm on the ITO substrate (below Marketing ITO, and :20ohms / by Asahi Glass Co., Ltd., and **) which performed oxygen plasma treatment. The dissolution range of this electron hole transportation layer was 8.9-10.0(cal/cm3) 1/2.

[0196] Furthermore, the luminous layer of 20nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 2 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on an electron hole transportation layer.

[0197] Furthermore, vapor codeposition of aluminum and the lithium was carried out by evaporation rate 1 nm/sec so that a lithium might become 1%, cathode was formed in the last which obtained the 50nm electronic transportation layer by carrying out the spin coat of the solution 3 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on a luminous layer, and when the component structure shown in drawing 2 was created, luminescence of the luminous efficiency shown in following [table 12] was obtained. [0198]

[Table 12]

	1 mA/cmでの性能	
n		輝度(cd/m)
5	8. 0	460
6	8. 0	460
7	8. 1	460
8	8. 2	460
9	8. 2	470
10	8. 2	470
_11	8. 2	470
12	8. 3	470
13	8.3	460
14	8. 4	460
15	素子作成出来ず	

[0199] In N= 15, since a luminous layer dissolved at the time of electronic transportation layer membrane formation, the component was not able to be created.

[0200] Except having changed the solvent of the [example 39] solution 3 into nitroethane, when the component structure shown in <u>drawing 2</u> like [an example 38] was created, luminescence of the luminous efficiency shown in following [table 13] was obtained.

[0201]

[Table 13]

_	1mA/c㎡での性能					
n	電圧 (V)	輝度(cd/mi)				
5	8. 2	430				
6	8. 2	430				
7	8. 2	430				
8~15	素子作成出来ず					

[0202] In N>=8, since a luminous layer dissolved at the time of electronic transportation layer membrane formation, the component was not able to be created.

[0203] When the substituent shown as R during [-izing 2] according to [an example 38], and [an example 39] is an alkyl group, the dissolution range of the polymer which repeats [-izing 2] and it has in a unit can be adjusted, and it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of the electron hole transportation layer located in a lower layer, and the membrane formation of an electronic transportation layer located in the upper layer by choosing this alkyl group. And the laminating of the luminous layer and electron hole transportation layer which are constituted using the polymer which repeats [-izing 2] and it has in a unit, and the electronic transportation layer can be carried out with a wet method, and luminescence of the organic electroluminescent element of such structure is obtained.

[0204] The dissolution range of each molecular weight when changing the molecular weight of N-normal octyl poly carbazole compound which generated R in the repeat unit shown by [the example 40] and [-izing 2] as -C8H17 of a straight chain was measured. When the measuring method was performed like [the experiment 1], the measurement result shown in following [table 14] was obtained.

[0205]

[Table 14]

分子量	溶解範囲				
ガ丁島	上限	下限			
10, 000	11. 1	8. 7			
60, 000	10. 6	8. 9			
100, 000	9. 9	9. 1			
500, 000	9. 7	9. 1			
1, 000, 000	9. 7	9. 3			

[0206] It turns out that the dissolution range can be adjusted with the molecular weight of the polymer which repeats [-izing 2] by [Table 14] and it has in a unit.

[0207] Become easy to choose the solvent used for membrane formation of an electron hole transportation layer as the solubility parameter range of the electron hole transportability matter contained in an electron hole transportation layer is or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature here. Furthermore, it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of an electronic transportation layer as the solubility parameter range of the electronic transportability matter contained in an electronic transportation layer is or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2 in a room temperature.

[0208] Here, when the component structure shown in drawing 2 like [an example 38] was

[0208] Here, when the component structure shown in <u>drawing 2</u> like [an example 38] was created using the poly carbazole compound adjusted to the above-mentioned molecular weight, luminescence of the luminous efficiency shown in following [table 15] was obtained.

[0209]

[Table 15]

分子量	1 mA/c ㎡での性能					
カ丁里	電圧 (V)	輝度(cd/mi)				
_10,000	8. 2	460				
60,000	8. 2	460				

[0210] A solution 2 was not able to be created in molecular weight 100,000-1,000,000. [0211] [Example 41] As a normal dodecyl poly carbazole of the molecular weight 10,000 which set to -C12H25 of a straight chain R in the repeat unit shown by [-izing 2] Except having dissolved in the solvent (1ml each) which shows 0.17mg to following [table 16] as 5mg and Ir (ppy)3, and having created the solution 2, when the component structure shown in drawing 2 like [an example 35] was created, luminescence of the luminous efficiency shown in [Table 16] was obtained.

[0212]

[Table 16]

溶媒名	溶解度	1 m A / c ㎡での性能			
/ 19 14 15 15 15 15 15 15 15	パラメータ	電圧 (V)	輝度 (cd/m)		
1-クロロプロパン	8, 30	8. 2	440		
テトラクロロメタン	8. 60	8. 2	460		
エチルペンゼン	8. 70	8. 2	460		
m−キシレン	8. 80	8. 2	460		
トルエン	8. 90	主フル	of Tab		
0-ジクロロペンゼン	10.00	素子作成不能			
αプロモナフタリン	10. 60	8. 2	440		
ニトロエタン	11. 10	8. 4	440		
アセトニトリル	11, 80	8. 4	430		

[0213] even if a solvent changes -- the dissolution of an electron hole transportation layer -- if out of range, dispersion in brightness is only less than 10%.

[0214] This dissolution range can be adjusted and it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of the electron hole transportation layer located in a lower layer, and the membrane formation of an electronic transportation layer located in the upper layer by choosing the molecular weight of the polymer which repeats [-izing 2] and it has in a unit from [an example 40], and [an example 41] when the substituent shown as R during [-izing 2] is an alkyl group. And the laminating of the luminous layer and electron hole transportation layer which are constituted using the polymer which repeats [-izing 2] and it has in a unit, and the electronic

transportation layer can be carried out with a wet method, and luminescence of the organic electroluminescent element of such structure is obtained.

[0215] as R shown by [the example 42] and [-izing 1] -- the following -- the place measured by the measuring method which shows the dissolution range of each polymer of molecular weight 100,000 which repeats ** [-izing 1] and it has in a unit using the substituent shown in [Table 17] to [experiment 1] -- the following -- the result shown in [Table 17] was obtained.

[0216] The dissolution range shown in following [table 17] shows that the dissolution range can be adjusted with the carbon number of a substituent, as well as the case of an alkyl group when the substituent shown as R during [-izing 1] is an alkoxyl group or an aryl group.

[0217] Become easy to choose the solvent used for membrane formation of an electron hole transportation layer at this time as the solubility parameter range of the electron hole transportability matter contained in an electron hole transportation layer is or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature. Furthermore, it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of an electronic transportation layer as the solubility parameter range of the electronic transportability matter contained in an electronic transportation layer is or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2 in a room temperature. [0218] Here, 6mg was dissolved by 1ml 1,2-dichloroethane as PVK of molecular weight 1,100,000, and the solution 1 was created.

[0219] 0.17mg was dissolved in ethylbenzene 1ml as 5mg and Ir (ppy)3 using the substituent shown in following [table 17] as R under [-izing 1] as a polymer of the molecular weight 100,000 which repeats ** [-izing 1] and it has as a unit, and the solution 2 was created. [0220] Polystyrene 2.5ml of molecular weight 50,000 was dissolved in cyclohexane 1ml as 2.5mg and a binder giant molecule as PBD, and the solution 3 was created.

[0221] The electron hole transportation layer of 50nm thickness was formed by carrying out the spin coat of the solution 1 for 1 second by rotational frequency 1500rpm on the ITO substrate (below Marketing ITO, and :200hms / by Asahi Glass Co., Ltd., and **) which performed oxygen plasma treatment. The dissolution range of this electron hole transportation layer was 8.9-10.0(cal/cm3) 1/2.

[0222] Furthermore, the luminous layer of 20nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 2 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on an electron hole transportation layer.

[0223] Furthermore, the electronic transportation layer of 50nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 3 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on a luminous layer.

[0224] Vapor codeposition of aluminum and the lithium was carried out to the last by evaporation rate 1 nm/sec so that a lithium might become 1%, and cathode was formed in it. Thus, when the component shown in <u>drawing 2</u> was created, luminescence of the luminous efficiency shown in following [table 17] was obtained.

[0225]

[Table 17]

R	溶解	範囲	1mA/c㎡での性能		
	上限	下限	電圧 (V)	輝度(cd/m)	
C(CH ₃) ₃	8.8	8. 2	8. 2	450	
C ₆ H ₅	8.9	8. 2	8. 0	460	
C _B H ₄ CH ₃	9. 3	8. 7	8. 0	430	
OC5H11	8. 6	7. 6	素子作成不能		
OC8H17	9. 3	8. 2	茶ナ作成小能		
OC ₉ H ₁₉	9. 7	8. 3	7.6	480	
CH ₃ NH ₂	11.8	10. 6	7.8	470	
СООН	8. 6	6.8	8.0 440		

[0226] Also when the substituents shown as R during [-izing 1] by [Table 17] are an alkoxyl group and an aryl group, the dissolution range of the polymer which repeats [-izing 1] and it has in a unit can be adjusted, and it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of the electron hole transportation layer located in a lower layer, and the membrane formation of an electronic transportation layer located in the upper layer by choosing this alkoxyl group and aryl group. And the laminating of the luminous layer and electron hole transportation layer which are constituted using the polymer which repeats [-izing 1] and it has in a unit, and the electronic transportation layer can be carried out with a wet method, and luminescence of the organic electroluminescent element of such structure is obtained.

[0227] The laminating of such a luminous layer, an electron hole transportation layer, and an electronic transportation layer uses an alkoxyl group and an aryl group for the substituent shown as R during [-izing 1] like the case of an alkyl group, chooses the molecular weight of the polymer which repeats ** [-izing 1] and it has in a unit, and can form it also by adjusting the dissolution range of the polymer.

[0228] [example 43] as R under [-izing 2] -- the following -- the place measured by the measuring method which shows the dissolution range of each polymer of molecular weight 10,000 which repeats ** [-izing 2] and it has in a unit using the substituent shown in [Table 18] to [experiment 1] -- the following -- the result shown in [Table 18] was obtained.

[0229] The dissolution range shown in following [table 18] shows that the dissolution range can be adjusted with the carbon number of a substituent, as well as the case of an alkyl group when the substituent shown as R during [-izing 2] is an alkoxyl group or an aryl group.

[0230] Become easy to choose the solvent used for membrane formation of an electron hole transportation layer at this time as the solubility parameter range of the electron hole transportability matter contained in an electron hole transportation layer is or less more than 8.9(cal/cm3) 1/210.0(cal/cm3) 1/2 in a room temperature. Furthermore, it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of an electronic transportation layer as the solubility parameter range of the electronic transportability matter contained in an electronic transportation layer is or less more than 7.0(cal/cm3) 1/28.4(cal/cm3) 1/2 in a room temperature. [0231] Here, 6mg was dissolved by 1ml 1,2-dichloroethane as PVK of molecular weight 1,100,000, and the solution 1 was created.

[0232] 0.17mg was dissolved in ethylbenzene 1ml (it is nitroethane only when R is CH3NH2) as 5mg and Ir (ppy)3 using the substituent shown in following [table 18] as R under [-izing 2] as a polymer of the molecular weight 10,000 which repeats ** [-izing 2] and it has as a unit, and the solution 2 was created.

[0233] Polystyrene 2.5ml of molecular weight 50,000 was dissolved in cyclohexane 1ml as 2.5mg and a binder giant molecule as PBD, and the solution 3 was created.

[0234] The electron hole transportation layer of 50nm thickness was formed by carrying out the spin coat of the solution 1 for 1 second by rotational frequency 1500rpm on the ITO substrate

(below Marketing ITO, and :200hms / by Asahi Glass Co., Ltd., and **) which performed oxygen plasma treatment. The dissolution range of this electron hole transportation layer was 8.9-10.0(cal/cm3) 1/2.

[0235] Furthermore, the luminous layer of 20nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 2 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on an electron hole transportation layer.

[0236] Furthermore, the electronic transportation layer of 50nm thickness was obtained by carrying out the spin coat of the solution 3 for 1 second by rotational frequency 1000rpm on a luminous layer.

[0237] Vapor codeposition of aluminum and the lithium was carried out to the last by evaporation rate 1 nm/sec so that a lithium might become 1%, and cathode was formed in it. Thus, when the component shown in <u>drawing 2</u> was created, luminescence of the luminous efficiency shown in following [table 18] was obtained.

[0238]

[Table 18]

R	溶解	範囲	1mA/c㎡での性能		
	上限	上限 下限		輝度(cd/m)	
OC ₃ H ₇	10.0	8. 9	素子₹	成不能	
OC4H9	10. 6	8.8	8. 0	410	
C(CH ₃) ₃	10. 0	8.8	8. 0	400	
OC(CH ₃) ₃	10. 6	8. 7	8. 1	420	
C ₆ H ₅	10.0	8.8	8. 0	410	
C ₆ H ₄ CH ₃	10.6	8.8	8. 0	410	
CH ₃ NH ₂	11. 8	9. 2	8. 1	400	
соон	10.6	8. 2	素子作成不能		

[0239] Also when the substituents shown as R during [-izing 2] by [Table 18] are an alkoxyl group and an aryl group, the dissolution range of the polymer which repeats [-izing 2] and it has in a unit can be adjusted, and it becomes easy to choose the solvent used for membrane formation of the electron hole transportation layer located in a lower layer, and the membrane formation of an electronic transportation layer located in the upper layer by choosing this alkoxyl group and aryl group. And the laminating of the luminous layer and electron hole transportation layer which are constituted using the polymer which repeats [-izing 2] and it has in a unit, and the electronic transportation layer can be carried out with a wet method, and luminescence of the organic electroluminescent element of such structure is obtained.

[0240] The laminating of such a luminous layer, an electron hole transportation layer, and an electronic transportation layer uses an alkoxyl group and an aryl group for the substituent shown as R during [-izing 2] like the case of an alkyl group, chooses the molecular weight of the polymer which repeats ** [-izing 2] and it has in a unit, and can form it also by adjusting the dissolution range of the polymer.

[0241]

[Effect of the Invention] The host agent used for this invention consists of conductive polymers, and since ionization potential is comparatively small, as for the organic electroluminescent element possessing the luminous layer which has such a host agent, luminescence of high brightness is comparatively obtained by the drive of a low battery, so that clearly from the above explanation. That is, luminous efficiency can be raised.

[0242] Moreover, since the host agent which consists of the conductive polymer used for the luminous layer of this invention chooses the substituent in the molecular structure, and the molecular weight of a macromolecule and can adjust the dissolution range, it becomes easy to

choose the solvent used for membrane formation with an adjacent layer slack electron hole
transportation layer and an electronic transportation layer, and creation of component structure is
easy for it.

[Translation done.]



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number:

2003077673 A

(43) Date of publication of application: 14.03.2003

(51) Int. CI

H05B 33/14

C09K 11/06, H05B 33/10, H05B 33/22 // C07D213/16, C07D277/66, C07D409/14

(21) Application number:

2001297338

(71) Applicant: HONDA MOTOR CO LTD

(22) Date of filing:

27.09.2001

(72) Inventor:

TSUGE HODAKA

(30) Priority:

19.06.2001 JP 2001185486

KOMATSUZAKI AKIHIRO

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT **ELEMENT**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent element providing high light emission efficiency.

SOLUTION: In this organic electroluminescent element formed between both electrode layers, namely, an anode layer and a cathode layer and provided with a light emitting layer having host agent and dope agent irradiating phosphorescence, a positive hole carrier layer, and an electron carrier layer, the host agent is composed of polymer having repeated unit expressed by the general formula (1) or (2). In the formula (1), R denotes any of hydrogen, aliphatic hydrocarbon group, aromatic hydrocarbon group, ether group, and heterocyclic group. In the formula (2), R denotes any of hydrogen, aliphatic hydrocarbon group, aromatic hydrocarbon group, ether group, and heterocyclic group.

COPYRIGHT: (C)2003,JPO

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出顧公開番号 特開2003-77673 (P2003-77673A)

(43)公開日 平成15年3月14日(2003.3.14)

(51) Int.CL7		識別記号			FΙ				Ť	-73-1*(参考)
H05B	33/14				HO:	5 B	33/14		В	3K007
C09K	11/06	660			COS	9 K	11/06		660	4 C 0 5 5
		690		•					690	4 C 0 6 3
H05B	33/10		•		H0	5 B	33/10			•
	33/22	• .		٠			33/22		В	
				審查請求	农糖未	蘭以	マダク数13	OL	(全 18 頁)	最終頁に続く
		·	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		T				·	····

(21) 出顧番号 特顧2001-297338(P2001-297338)

(22) 出顧日 平成13年9月27日(2001.9.27)

(31) 優先権主張番号 特顧2001-185486 (P2001-185486)

(32) 優先日 平成13年6月19日(2001.6.19)

(33)優先権主張国 日本(JP)

(71)出版人 000005326

本田技研工業株式会社

東京都港区南青山二丁目1番1号

(72)発明者 柘植 穂高

埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホン

ダエンジニアリング株式会社内

(72)発明者 小松崎 明広

埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホン

ダエンジニアリング株式会社内

(74)代理人 100060025

弁理士 北村 欣一 (外2名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

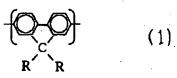
(57)【要約】

(修正有)

【課題】発光効率の高い有機エレクトロルミネッセンス 素子を提供する。

【解決手段】陽極層及び陰極層の両電極層間に形成され、ホスト剤と燐光を放射するドープ剤とを有する発光層と正孔輸送層と電子輸送層とを具備する有機エレクトロルミネッセンス素子において、ホスト剤を、一般式(1)、または、一般式(2)で表される繰り返し単位を有する重合体で構成する。

【化1】



(一般式(1)中、Rは水素、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、エーテル基、複素環基のいずれかを示す。) 【化2】



(一般式(2)中、Rは水素、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、エーテル基、複素環基のいずれかを示す。)

【特許請求の範囲】

【請求項1】陽極層及び陰極層の両電極層間に形成され、ホスト剤と燐光を放射するドープ剤とを有する発光層と正孔輸送層と電子輸送層とを具備する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記ホスト剤が導電性高分子から成ることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】前記導電性高分子は、 【化1】

(Q_CO)

(一般式 [化1]中、Rは水業、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、エーテル基、複素環基のいずれかを示す。)一般式 [化1]、または、

【化2】



(一般式 [化2] 中、Rは水素、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、エーテル基、複素環基のいずれかを示す。) 一般式 [化2] で表される繰り返し単位を有する 重合体で構成されることを特徴とする請求項1に記載の 有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】前記 [化1] または [化2] を繰り返し単位に有する重合体は、共重合体から成ることを特徴とする請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】前記 [化1] または [化2] で表される繰り返し単位中のRは、炭素数15以下のアルキル基から成ることを特徴とする請求項2または3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】前記[化1]または[化2]で表される繰り返し単位中のRは、炭素数15以下のアルコキシル基から成ることを特徴とする請求項2または3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】前記 [化1] または [化2] で表される繰り返し単位中のRは、アリール基を有する置換基から成ることを特徴とする請求項2または3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】前記 [化1] または [化2] を繰り返し単位として有する重合体が、前記正孔輸送層を構成する正孔輸送性物質を不溶とする溶媒に可溶であると共に前記電子輸送層を構成する電子輸送性物質を不溶とする溶媒に可溶であるように、前記 [化1] または [化2] 中にRとして表される置換基、または、前記重合体の分子量が選ばれることを特徴とする請求項2乃至6のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項8】前記正孔輸送性物質の室温における溶解度

パラメータ範囲を、8.9 (cal/cm³) 1/2以上13.0 (cal/cm³) 1/2以下とするために、前記重合体は、室温における溶解度パラメータが7.0 (cal/cm³) 1/2 未満の範囲に属する、nーペンタン、ヘキサン、ヘプタン、nーオクタン、nーノナン、nーデカン、1ーデセン、メチルシクロヘキサン、シクロヘキサン、1ークロロプロパン、テトラクロロメタン、エチルベンゼンまたはmーキシレンのいずれかの溶媒に可溶であることを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項9】前記正孔輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、8.9 (cal/cm³)1/2以上10.0 (cal/cm³)1/2以下とすると共に、前記電子輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、7.0 (cal/cm³)1/2以上8.4 (cal/cm³)1/2以下とするために、前記重合体は、室温における溶解度パラメータが8.4 (cal/cm³)1/2より大きく8.9 (cal/cm³)1/2未満の範囲に属する、テトラクロロメタン、エチルベンゼンまたはmーキシレンのいずれかの溶媒に可溶であることを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】前記正孔輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上10.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下とすると共に、前記電子輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、7.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上8.4 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下とするために、前記重合体は、室温における溶解度パラメータが10.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ より大きく13.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下の範囲に属する、 α プロモナフタリン、ニトロエタン、アセトニトリルまたはニトロメタンのいずれかの溶媒に可溶であることを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項11】前記正孔輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上10.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下とすると共に、前記電子輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、11.5 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上13.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下とするために、前記重合体は、室温における溶解度パラメータが10.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ より大きく11.5 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 未満の範囲に属する、 α ブロモナフタリンまたはニトロエタンのいずれかの溶媒に可溶であることを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項12】前記ドープ剤は、

【化3】

$$\left(\begin{array}{c} X_{12} \\ \uparrow \\ ArN \end{array}\right)_{n}^{l_{n}} \left(X_{13}\right)_{3-n}$$

(一般式 [化3] 中、Arはアリール基、X₁₂及びX₁₃はそれぞれ独立に脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、エーテル基、複素環基のいずれかを示し、ArとX₁₂とにおいて芳香環が縮合しても良く、nは1以上3以下の整数である。)一般式 [化3] で表される化合物から成ることを特徴とする請求項1乃至11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項13】前記ドープ剤は、

【化4】

(一般式 [化4] 中、R1~R8は、それぞれ独立に、水素、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、エーテル基、複素環基のいずれかを示し、あるいは/および隣接するRn(nは1以上8以下のいずれかから成る整数)において芳香環が縮合しても良い。)一般式 [化4]で表される化合物から成ることを特徴とする請求項1乃至11のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、高輝度での発光が 可能な有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。 【0002】

【従来の技術】従来、米国特計第6097147号により、燐光を放射する物質を含有する発光層を備えた多層積層構造で形成された有機エレクトロルミネッセンス素子が知られている。

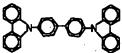
【0003】このものでは、励起一重項状態による発光、即ち、蛍光のみを利用して発光させる場合の内部量子効率の理論的限界が25%であるのに対し、燐光による発光は、三重項状態の励起エネルギーが発光に寄与するため内部量子効率の理論的限界を100%と考えてよい。このため、駆動電圧に対する発光輝度で定義される発光効率の向上が期待できる。

[0004]

【発明が解決しようとする課題】ところで、上記従来の 有機エレクトロルミネッセンス素子では、発光層中のホ スト剤として、

[0005]

【化5】



【0006】 [化5] に示すカルバゾールビフェニル (以下、CBPとも言う。)を用いている。CBPは、 正孔及び電子の移動度が低いため、電気抵抗値を上昇させる要因となる。したがって、有機エレクトロルミネッセンス素子を駆動させる場合には比較的高い印加電圧が必要となり、これが所期の発光効率の向上を阻害することになる。

【0007】本発明は、上記問題点に鑑み、低電圧での 駆動により高輝度で発光し得る、即ち、発光効率の高い 有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することを課 題としている。

[0008]

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するため、本発明は、陽極層及び陰極層の両電極層間に形成され、ホスト剤と燐光を放射するドープ剤とを有する発光層と正孔輸送層と電子輸送層とを具備する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記ホスト剤に導電性高分子を用いている。このものは、正孔及び電子の移動度が高いので、有機エレクトロルミネッセンス素子全体の電気抵抗値を軽減できる。

【0009】この場合、前記導電性高分子を、前記[化1]または[化2](一般式[化1]及び[化2]中、Rは水素、脂肪族炭化水素基、芳香族炭化水素基、エーテル基、複素環基のいずれかを示す。)で表される繰り返し単位を有する重合体で構成することが好適である。【0010】さらに、この場合、前記[化1]または「化2]を繰り返し単位に有する重合体を共重合体として構成することも可能である。

【0011】さらに、この場合、前記 [化1] または [化2] で表される繰り返し単位中のRは、炭素数15以下のアルキル基から成ることが望ましい。

【0012】また、前記 [化1] または [化2] で表される繰り返し単位中のRは、炭素数15以下のアルコキシル基から成ることが望ましい。

【0013】また、前記 [化1] または [化2] で表される繰り返し単位中のRは、アリール基を有する置換基から成ることが望ましい。

【0014】また、前記[化1]または[化2]中にRとして表される置換基、または、前記重合体の分子量を選んで、前記[化1]または[化2]を繰り返し単位として有する重合体が、前記正孔輸送層を構成する正孔輸送性物質を不溶とする溶媒に可溶であると共に前記電子輸送層を構成する電子輸送性物質を不溶とする溶媒に可溶であるようにすれば、上記有機エレクトロルミネッセンス素子を湿式法で形成できる。

【0015】この場合、湿式法で用いる溶媒の選択の便 宜上、前記正孔輪送性物質の室温における溶解度パラメ ータ範囲を、8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上13.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下とするために、前記重合体を可溶とする溶媒として、室温における溶解度パラメータが7.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 、本満の範囲に属する、n-ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、n-オクタン、n-ノナン、n-デカン、1-デセン、メチルシクロヘキサン、シクロヘキサン、1-クロロプロパン、テトラクロロメタン、エチルベンゼンまたはm-キシレンなどを用いることができる。

【0016】また、湿式法で用いる溶媒の選択の便宜上、前記正孔輪送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、8.9(cal/cm³)¹/²以上10.0(cal/cm³)¹/²以下とすると共に、前記電子輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、7.0(cal/cm³)¹/²以上8.4(cal/cm³)¹/²以下とするために、前記重合体を可溶とする溶媒として、室温における溶解度パラメータが8.4(cal/cm³)¹/²より大きく8.9(cal/cm³)¹/²未満の範囲に属する、テトラクロロメタン、エチルベンゼンまたはmーキシレンなどを用いることができる。

【0017】同様に、前記正孔輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、8.9(cal/cm³) $^{1/2}$ 以上10.0(cal/cm³) $^{1/2}$ 以下とすると共に、前記電子輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、7.0(cal/cm³) $^{1/2}$ 以上8.4(cal/cm³) $^{1/2}$ 以下とするために、前記重合体を可溶とする溶媒として、室温における溶解度パラメータが10.0(cal/cm³) $^{1/2}$ 以下の範囲に属する、 α プロモナフタリン、ニトロエタン、アセトニトリルまたはニトロメタンなどを用いることができる。

【0018】さらに、前記正孔輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、8.9(cal/cm^3) $^{1/2}$ 以上10.0(cal/cm^3) $^{1/2}$ 以下とすると共に、前記電子輸送性物質の室温における溶解度パラメータ範囲を、11.5(cal/cm^3) $^{1/2}$ 以上13.0(cal/cm^3) $^{1/2}$ 以下とするために、前記重合体を可溶とする溶媒として、室温における溶解度パラメータが10.0(cal/cm^3) $^{1/2}$ より大きく11.5(cal/cm^3) $^{1/2}$ 未満の範囲に属する、 α プロモナフタリンまたはニトロエタンなどを用いることができる。

【0019】また、上記のように前記 [化1]または [化2]で表される繰り返し単位を有する重合体を用いたホスト剤に対して、燐光を放射するドープ剤として一般式 [化3]または [化4]で示される化合物を用いると、燐光により発光し得る有機エレクトロルミネッセンス素子の形成が可能になる。

[0020]

【発明の実施の形態】図1は、発光効率の向上を目的として多層に積層された素子構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の基本構造を示す。有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造は、図外の基板上に形成された陽極層10に、正孔輸送層20、電子ブロック層30、発光層40、正孔ブロック層50及び電子輸送層60の各薄膜層が、陽極層10と陰極層70との両電極層間で順次積層されて成る多層積層構造であり、発光層40は、発光層ドープ剤41と発光層ホスト剤42とを有して構成されている。

【0021】図1で示される素子構造において、陽極層 10は、例えばガラス基板のような透明絶縁性支持体に形成された透明な導電性物質が用いられ、その材料としては、酸化錫、酸化インジウム、酸化錫インジウム(ITO)などの導電性酸化物、あるいは、金、銀、クロムなどの金属、よう化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリチオフェン、ポリビロール、ポリアニリン等の導電性ポリマーなどを用いることができる。

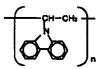
【0022】また、陰極層70が透明な材料で形成されている場合には、陽極層10は不透明な材料で形成されても良い。

【0023】また、図1で示される素子構造において、陰極層70には、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、硼素、アルミニウム、鋼、銀、金などの単体または合金が使用できる。さらに、これらを積層して使用することもできる。また、テトラヒドロアルミン酸塩により湿式で形成することもできる。この場合、陰極層70に用いられるテトラヒドロアルミン酸塩としては、特に、水素化アルミニウムリチウム、水素化アルミニウムカルシウムを挙げることができる。この中で、水素化アルミニウムリチウムが、特に電子輸送層への電子注入性に優れている。

【0024】また、正孔輸送層20は、陽極層10から 注入される正孔を輸送するための層であり、正孔輸送性 有機物を含む有機層である。正孔輸送層性有機物の例と して、[化5]に示すCBP、

[0025]

【化6】



【0026】[化6] に示すポリ(Nービニルカルバゾ ール)(以下PVKともいう。)、

[0027]

【化7】

【0028】[化7] に示すポリ (パラーフェニレンビニレン)、などの高分子からなることが好ましい。あるいは、

【0029】 【化8】

【0030】[化8] に示すN, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル) -1, 1' -ビフェニル-4, 4' -ジアミン(以下TPDともいう。)、

【0031】 【化9】

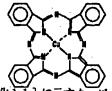
【0032】[化9] に示すN, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(1-ナフチル) -1, 1' -ビフェニル-4, 4' -ジアミン(以下NPDとも言う。)

【0033】 【化10】

【0034】 [化10] に示す4、4'ービス(10ーフェノチアジニル) ビフェニル、

[0035]

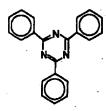
【化11】



【0036】 [化11] に示すカッパーフタロシアニン等が挙げられる。

【0037】また、電子ブロック層30は、陰極層70から発光層40へ注入された電子がそのまま陽極層10へ通過してしまうことを防ぐため電子をブロックするための層であり、電子ブロック性物質で構成される。電子ブロック性物質としては、例えば、「化6」、「化7」、「化8」乃至「化10」で示される化合物や、

【0038】 【化12】



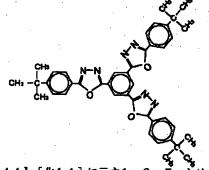
【0039】【化12】に示す2、4、6-トリフェニル -1、3、5-トリアゾール、 【0040】

【化13】

【0041】 【化13】 に示すフローレン、などを挙げることができる。

【0042】また、発光層40はドープ剤41とホスト剤42とを有し、これらドープ剤41とホスト剤42とを均一に分散させるため、バインダ高分子を添加することも可能である。ホスト剤42は、陽極層10及び陰極層70からそれぞれ注入された正孔と電子とが発光層40において再結合する際に賦活されて励起子として作用する物質であり、「化5」に示すCBP、

【0043】 【化14】



【0044】[化14]に示す1,3,5-ドリ(5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキ サジアゾール)フェニル(以下OXD-1ともい う。)、

【0045】 【化15】



【0046】 (化15)で示されるN-フェニルポリカル パゾール 【0047】 【化16】

【0048】(一般式(化16)中、Rは水素、脂肪族炭 化水素基、芳香族炭化水素基、エーテル基、複素環基の いずれかを示す。) 一般式[化16]を繰り返し単位とし て有するポリフルオレン化合物、例えば、

[0049] 【化17】

【0050】[化17]で示されるジノルマルオクチル ポリフルオレン

[0051] 【化18】

【0052】[化18]で示されるジノルマルオクチル フルオレン/チオフェンコポリマーなどを挙げることが できる。

【0053】一方、発光層40のドープ剤41は、励起 子たるホスト剤42の励起エネルギーにより燐光を放射 する物質であり、

[0054]

【化19】



【0055】[化19]に示すトリ(2フェニルピリジ ン) イリジウム錯体 (以下 I r (ppy) 3とも言 う。)、

[0056]

【化20】



[0057] 【化21】

[0058] 【化22】

[0059]

【化23】



[0060]

【化24】



[0061]

【化25】

【0062】(化学式(化25)中、acacは、

[0063]

【化26】



【0064】(化26)で示される官能基を示す。下記) [化27]乃至(化31]に示す化学式において同じ。)

[0065]

【化27】



[0066]

【化28】

[0067]

【化29】

[0068]

【化30】



[0069] 【化31】

【0070】[化19]乃至[化25]、[化27]乃至[化 31]で示されるイリジウム錯体化合物、

[0071] 【化32】

【0072】[化32]に示す2、3、7、8、12、 13, 17, 18-オクタエチル-21H, 23H-白 金(II)ポルフィン(以下PtOEPとも言う。)、な どを挙げることができる。

【0073】また、発光層40に添加可能なバインダ高 分子の例として、ポリスチレン、ポリビニルピフェニ ル、ポリビニルフェナントレン、ポリビニルアントラセ ン、ポリビニルペリレン、ポリ(エチレンーcoービニ ルアセテート)、ポリブタジエンのcisとtran s、ポリ(2-ビニルナフタレン)、ポリビニルピロリ ドン、ポリスチレン、ポリ(メチルメタクリレート)、 ポリ (ビニルアセテート)、ポリ (2-ビニルピリジン -co-スチレン)、ポリアセナフチレン、ポリ (アク リロニトリルーco-ブタジエン)、ポリ (ベンジルメ タクリレート)、ポリ(ピニルトルエン)、ポリ(スチ レンー c o - アクリロニトリル)、ポリ(4-ビニルビ フェニル)、ポリエチレングリコールなどが挙げられ る。

【0074】また、正孔ブロック層50は、陽極層10 から発光層40へ注入された正孔がそのまま陰極層70 へ通過してしまうことを防ぐため正孔をブロックするた めの層であり、正孔ブロック性物質で構成される。正孔 ブロック性物質としては、例えば、

[0075] 【化33】



【0076】 (化33)に示すバソキュプロイン (以下B

CPともいう。)、 [0077] 【化34】

【0078】 [化34] に示す4, 4 ーピス(1, 1 ージフェニルエテニル) ピフェニル (以下にDPVBi ともいう。)、

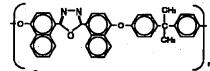
[0079]

【化35】

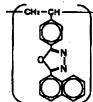
【0080】[化35]に示される4,4'-ビス (1,1-ビス(4-メチルフェニル)エテニル)ビフ ェニル(以下DTVBiとも言う。)、

[0081]

【化36】



[0082] 【化37】

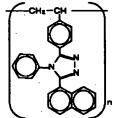


【0083】[化36]、[化37]に示すようなオキ サジアゾール系高分子化合物、

[0084]

【化38】

[0085] 【化39】



【0086】[化38]、[化39]で示すようなトリアゾール系高分子化合物、などを挙げることができる。【0087】また、電子輸送層60は、陰極層70から注入される電子を輸送するための層であり、電子輸送剤を含む。電子輸送剤は、電子輸送性高分子で構成され、さらに電子輸送性低分子を含む構成が可能である。【0088】ここで、電子輸送性低分子の例として、[化14]に示されるOXD-1、【0089】【化40】

【0090】 【化40】 に示す2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、(以下PBDともいう。)、

【0091】 【化41】



【0092】 [化41] に示すトリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム(以下Alq3ともいう。)、また、電子輸送性高分子の例として、 [化36]、 [化37] に示すようなオキサジアゾール系高分子化合物、 [化38]、 [化39] で示すようなトリアゾール系高分子化合物、などを挙げることができる。

【0093】発光効率のさらなる向上や構造の簡素化のため、図1に示す有機エレクトロルミネッセンス素子の基本構造に変更を加えたものとして、図2乃至図4に示す素子構造が可能である。

【0094】図2で示される有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の第1の実施形態を示す。図1の電子ブロック層30と正孔ブロック層50とが省略されているが、図2において、正孔輸送層20に電子ブロック効果を、電子輸送層60に正孔ブロック効果をそれぞれ持たせて、発光効率を維持させることができる。

【0095】図3で示される有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造は、図1で示す素子構造において、電子ブロック層30を省略したものである。

【0096】図4で示される有機エレクトロルミネッセ

ンス素子の素子構造は、図1で示す素子構造から、電子 ブロック層30と正孔ブロック層50とを省略し、陰極 層70と電子輸送層60との間に電子注入性物質で構成 される電子注入層61を追加したものである。

【0097】電子注入性物質としては、たとえば、フッ化リチウム、酸化リチウム、

[0098]

【化42】



【0099】 【化42】で示される8-ヒドロキシキノリナートリチウム (以下Liqともいう。) などが挙げられる

【0100】次に、図2を本発明の第1の実施形態として、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を説明する。

【0101】まず、基板(図示せず)となる透明絶縁性 支持体、例えばガラス基板上に陽極層10を蒸着法また はスパッタ法にて形成する。

【0102】次に、正孔輸送性高分子または正孔輸送性低分子を溶媒に溶解または分散した第1の溶液を作成する。ここで、第1の溶液に、さらにバインダ高分子を溶解または分散することも可能である。そして、第1の溶液を用いた湿式法によって、陽極層10上に正孔輸送層20を形成する。

【0103】さらに、発光層40のドーブ剤41とホスト剤42とを溶媒に溶解または分散した第2の溶液を作成する。ここで、第2の溶液に、さらにバインダ高分子を溶解または分散することも可能である。そして、その第2の溶液を用いた湿式法によって、上記正孔輸送層20上に発光層40を形成する。

【0104】さらに、電子輸送性高分子または電子輸送性低分子を溶媒に溶解または分散した第3の溶液を作成する。ここで、第3の溶液に、さらにバインダ高分子を溶解または分散することも可能である。その第3の溶液を用いた湿式法によって、発光層40上に電子輸送層60を形成する。

【0105】また、第2の溶液に用いた溶媒の溶解度パラメータは、発光層40の成膜温度において、正孔輸送層20に含まれる物質(正孔輸送性高分子または正孔輸送性低分子から成る正孔輸送性物質など)に対して可溶範囲外を示す値を有する。このような溶媒を用いた、湿式法による発光層40の形成において、下層の正孔輸送層20に含まれる有機物を溶解することがない。

【0106】また、第3の溶液に用いる溶媒の溶解度パラメータは、電子輸送層60の成膜温度において、発光層40に含まれる物質(ドープ剤41やホスト剤42から成る発光性物質及びパインダ高分子など)に対して可溶範囲外を示す値を有する。このような溶媒を用いた、

湿式法による電子輸送層60の形成において、下層の発 光層40に含まれる有機物を溶解することがない。

【0107】ここで、正孔輸送層20に含まれる正孔輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上13.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下であると、第1の溶液に用いる溶媒を選択し易くなる。

【0108】ところで、[化1]を繰り返し単位として 有する重合体は、[化1]中のRや重合体の分子量を選 択することによりその溶解度パラメータ範囲を調整する ことができる。したがって、このように調整して【化 1]を繰り返し単位として有する重合体の室温における 溶解度パラメータを、上記8.9 (cal/cm3)1/2 以上13.0(cal/cm³)1/2以下の範囲外、即 ち、7.0(cal/cm³)1/2以上8.9(cal/ cm3)1/2未満の範囲とし、第2の溶液に用いる溶媒と して、この溶解度パラメータ範囲に属する溶媒を用いる と、正孔輸送層20の正孔輸送性物質を溶解することな く発光層40を形成することができる。なお、この場 合、発光層40の上層として隣接する電子輸送層60 は、蒸着などの乾式法で形成することができる。 【0109】上記第2の溶液に用いる溶媒の例として、 nーペンタン(室温における溶解度パラメータ、以下同 $U: 7.05 (cal/cm^3)^{1/2}), \land + + \lor \lor (7.$ 30 (cal/cm³) 1/2)、ヘプタン (7.45 (c $a 1/cm^3)^{1/2}$, $n-\pi/2/2$, (cal $/cm^{3})^{1/2}$, n-J+y(7.64(cal/cm $^{3})^{1/2}), n-\vec{\tau} \rightarrow (7.74 \text{ (cal/cm}^{3}))$ 1/2) $1 - \vec{r} + \vec{v}$ (7.85 (cal/c m³)1/2)、メチルシクロヘキサン(8.13(cal $/cm^3)^{1/2}$)、シクロヘキサン(8.20(cal/ $cm^3)^{1/2}$)、1-クロロプロパン(8.30(cal) $/cm^3)^{1/2}$)、テトラクロロメタン(8.60(ca $1/c m^3$) 1/2), $x \neq \nu \wedge \nu \wedge \nu \wedge (8.70)$ $/cm^3)^{1/2}$)、m-キシレン(8.80(cal/c)m³)1/2)などが挙げられる。もちろん、第2の溶液の 用いることができる溶媒は、室温における溶解度パラメ ータが、7.0(cal/cm³)1/2以上8.9(ca 1/c m³) 1/2未満の範囲に属する溶媒であれば良く、 上記に例示した溶媒に限定されるものでない。

【0110】また、ここで、正孔輸送層 20に含まれる正孔輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上10.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下であると第1の溶液に用いる溶媒を選択し易くなり、さらに、電子輸送層 60に含まれる電子輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において7.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下であると第3の溶液に用いる溶媒を選択し易くなる。

【0111】そこで、上記と同様に、[化1]を繰り返

【0112】この場合の、上記第2の溶液に用いる溶媒 の例として、テトラクロロメタン (室温における溶解度 パラメータ、以下同じ:8.60(ca1/c m^3) 1/2)、エチルペンゼン(8.70(cal/cm $^{3})^{1/2})$, $m-\pm \nu \nu \nu (8.80 (cal/cm^{3}))$ 1/2、αプロモナフタリン(10.60(cal/c m³) 1/2)、ニトロエタン(11.10(cal/cm 3)1/2)、アセトニトリル(11.80(cal/cm $^{3})^{1/2})$, $= h \Box x \not = y \lor (12.70 (cal/c))$ m³) 1/2) などが挙げられる。もちろん、第2の溶液の 用いることができる溶媒は、室温における溶解度パラメ ータが、8.4 (cal/cm³)1/2より大きく8.9 (cal/cm³)^{1/2}未満または10.0(cal/c m³) 1/2より大きく13.0(cal/cm³) 1/2以下 の範囲に属する溶媒であれば良く、上記に例示した溶媒 に限定されるものでない。

【0113】また、上記とは別に、正孔輸送層20に含まれる正孔輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において8.9 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上10.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下であると第1の溶液に用いる溶媒を選択し易くなり、さらに、電子輸送層60に含まれる電子輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において11.5 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以上13.0 $(cal/cm^3)^{1/2}$ 以下であると第3の溶液に用いる溶媒を選択し易くなる。

【0114】そこで、上記と同様に、[化1]を繰り返し単位として有する重合体の[化1]中のRや分子量を選択することによりその溶解度パラメータ範囲を調整して[化1]を繰り返し単位として有する重合体の室温における溶解度パラメータを、上記8.9(cal/cm³)^{1/2}以上10.0(cal/cm³)^{1/2}以上10.0(cal/cm³)^{1/2}以下の範囲外、例えば、10.0(cal/cm³)^{1/2}以下の範囲外、例えば、10.0(cal/cm³)^{1/2}より大きく11.5(cal/cm³)^{1/2}より大きく11.5(cal/cm³)^{1/2}未満の範囲とし、第2の溶液に用いる溶媒として、これらの

溶解度パラメータ範囲に属する溶媒を用いると、正孔翰 送層20の正孔輸送性物質を溶解することなく発光層4 0を形成でき、また、発光層40の発光性物質を溶解す ることなく電子輸送層60を形成することができる。

【0115】この場合の、上記第2の溶液に用いる溶媒の例として、 α プロモナフタリン(室温における溶解度パラメータ、以下同じ:10.60($ca1/cm^3$) $^{1/2}$)、ニトロエタン(11.10($ca1/cm^3$) $^{1/2}$)などが挙げられる。もちろん、第2の溶液の用いることができる溶媒は、室温における溶解度パラメータが、10.0($ca1/cm^3$) $^{1/2}$ より大きく11.5($ca1/cm^3$) $^{1/2}$ 未満の範囲に属する溶媒であれば良く、上記に例示した溶媒に限定されるものでない。

【0116】なお、上記数値範囲に関して、室温において7.0(cal/cm³)^{1/2}以下または13.0(cal/cm³)^{1/2}以上の溶解度パラメータを有する溶媒はほとんど存在しない。

【0117】この時、上記の第1万至第3の溶液に用いる溶媒は自然乾燥によって蒸発することにより、正孔輸送層20と発光層40と電子輸送層60とが形成される。この場合、加熱、紫外線の照射による重合、硬化等の処理を行う必要がなく、従って、製造工程が簡単であり生産効率を向上させることができる。

【0118】本発明で使用される湿式法には、たとえばキャスティング法、ブレードコート法、浸漬塗工法、スピンコート法、スプレイコート法、ロール塗工法、インクジェット塗工法などの通常の塗工法が含まれる。

【0119】最後に、電子輸送層60上に、蒸着法などを用いて陰極層70を形成し、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子が得られる。

【0120】なお、溶解度パラメータSPは、モル蒸発 熱 Δ H、モル体積Vの液体の絶対温度Tにおいて、 SP= $\{(\Delta H - RT)/V\}^{1/2}$

で定義される。ただし、上記式中、SPは溶解度パラメータ(単位: (cal/cm³)¹/²)であり、ΔHはモル蒸発熱(単位: cal/mol)であり、Rは気体定数(単位: cal/(mol·K))であり、Tは絶対温度(単位: K)であり、Vはモル体積(単位: cm³/mol)である。

【0121】また、図3は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の第2の実施形態であり、上記図2で示される素子構造の製造工程中、電子輸送層60の形成前に、発光層40上に[化40]に示すPBDなどの正孔ブロック性物質を湿式法により成膜して正孔ブロック層50を形成した後に、該正孔ブロック層50上に、上記図2と同様に電子輸送層60と陰極層70とを順次形成する製造工程を経て得られる。

【0122】また、図4は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の第3の実施形態であり、上記図2で示される素子構造の製造工程中、陰極層70の形成前

に、電子輸送層60上に、フッ化リチウムなどの電子注入性物質を蒸着法により成膜して電子注入層61を形成した後に、該電子注入層61上に、上記図2と同様に陰極層70を形成する製造工程を経て得られる。

[0123]

【実施例】【実施例1】ゲルパーエイションクロマトグラフィーにより測定したポリスチレン換算重量平均量(以下分子量と言う。)1,100,000の[化6]で示されるPVKとして6mgを1m1の1,2ジクロロエタンで溶解して、溶液1を作成した。

【0124】 [化17] で示されるジノルマルオクチルポリフルオレン (分子量60,000) として5mgと [化19] で示される Ir (ppy) 3として0.2mgとをキシレン1mlに溶解して、溶液2を作成した。【0125】ホスト剤として用いたジノルマルオクチルポリフルオレンのイオン化ポテンシャルと電子親和力とは、それぞれ5.8eVと2.2eVとであった。

【0126】即ち、ホスト剤たるジノルマルオクチルボリフルオレンは、ドープ剤たる $Ir(ppy)_3(5.3eV)$ より大きいイオン化ポテンシャル値を有し、 $Ir(ppy)_3(3.04eV)$ より小さい電子親和力を有する。

【0127】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上 (市販ITO、旭硝子社製:20Ω/□以下)に溶液1 を回転数1000rpmで1秒間スピンコートする事に より50nmの膜厚の正孔輸送層を得た。

【0128】さらに、正孔輸送層上に溶液2を回転数1 000rpmで1秒間スピンコートする事により20nmの膜厚の発光層を得た。

【0129】真空蒸着装置により、真空度10⁻³Pa下で、電子輸送層として(化41)で示されるAlq3を蒸着速度1nm/secで50nmの膜厚に成膜し、最後に、アルミニウムとリチウムを、リチウムが1%となるように蒸着速度1nm/secで共蒸着して陰極を形成して、図2に示す素子構造を作成した。

【0130】この時、7V(駆動電圧、以下同じ)、1 mA/cm²(電流密度、以下同じ)で500cd/m² (輝度、以下同じ)の緑色の発光が得られた。

【0131】[比較例1][実施例1]で溶液2を [化14]で示されるOXD-1として11.25mgと [化5]で示されるCBPとして1.25mgと Ir (ppy)3として0.17mgとバインダ高分子たる分子量100,000のポリビニルビフェニルとして2.5mgとをキシレン1mlに溶解して、溶液2を作成した事以外は(実施例1)と同様に図2に示す素子構造を作成した。この時、9V、1mA/cm²で480cd/m²の緑色の発光が得られた。

【0132】 [実施例2]~ [実施例7] [比較例2]~ [比 較例3] [化17] で示されるジノルマルオクチルポリ フルオレンにおけるオクチル基の替わりに下記 [表1] にRとして示す置換基を用いた以外は、〔実施例1〕と同様に図2に示す素子構造を作成したところ、 [表1]に示す発光効率の発光が得られた。このときに用いた、ポリフルオレン化合物の分子量はすべて60,000であった。

[0133]

【表1】

実施例	R	1 mA/c がでの性能	
天瓜河		電圧 (V)	輝度(cd/mf)
2	OC ₈ H ₁₇	7.2	440
3	C.H.C.H.7	7.0	460
4	C.H.OCH.	7.0	470
5	C _B H ₁₆ NH ₂	7.2	490
6	C15 H31	8.0	500
比較例2	CieHas	8.5	500
7	OC15H31	8. 2	500
比較例3	OC16Haa	8.7	500

【0134】上記[表1]から、Rとして用いる置換基の炭素数が多くなるほど、駆動電圧が上昇する。Rとして置換されるアルキル基またはアルコキシル基の炭素数は15以下が望ましい。

【0135】[実施例8]~[実施例14] [比較例4]~ [比較例5] [化17] に示されるジノルマルオクチルポリフルオレンの替わりに、[化2]に示される繰り返し単位を有するポリカルバゾール化合物として下記[表2]中にRとして示される置換基を有するものを用いた以外は、[実施例1]と同様に図2に示す素子構造を作成 したところ、[表2] に示す発光効率の発光が得られた。このときに用いたポリカルバゾール化合物の分子量はすべて60,000であった。

[0136]

【表2】

120 Mar / Par	実施例 R	1mA/cmでの性能	
失起何		電圧 (V)	輝度(cd/m)
8	C.H.,	7. 5	440
9	OC. H17	7. 5	460
10	C ₀ H ₅	6.8	470
11	C.H.CH.	6,8	490
1 2	C _B H ₁₆ NH ₂	7. 0	520
13	C18 H31	8, 2	500
比較例4	CigHaa	8.7	500
1.4	OC15H31	8.4	500
比較例5	OCIAHAA	8. 9	500

【0137】上記 [表2]から、Rの炭素数が多くなるほど、駆動電圧が上昇する。Rとして置換されるアルキル基またはアルコキシル基の炭素数は15以下が望ましい

【0138】[実施例15] ~[実施例26]ドープ剤としてIr(ppy)3に替え、下記[表3]に示される化合物を使用した事以外は(実施例1]と同様に図2に示す素子構造を作成したところ、[表3]に示す発光効率の発光が得られた。

[0139]

【表3】

実施例 化合物		1 m A / c ㎡での性能		長
天成四	7 1 L 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	電圧(V)	輝度 (cd/mf)	(n m)
15	[化20]	7,1	450	545
1 6	[化21]	7. 1	290	563
17	【化22】	7.2	550	525
18	[化23]	6. 9	360	555
19	[北24]	6. 9	50	608
20	[化25]	7. 0	510	516
2 1	[化27]	7.1	450	545
22	[化28]	7.1	280	563
23	[化29]	6. 9	540	525
24	[化30]	7.1	360	555
25	[化31]	7.0	40	608
26	[化32]	6.8	15	647

【0140】(実施例27)電子輸送層に用いたA1q3 に替えOXD-1を使用した以外は(実施例1)と同様に図2に示す素子構造を作成した。この時、7.5V、1mA/cm²で500cd/m²の緑色の発光が得られた。

【0141】[実施例28]発光層と電子輸送層の間に正孔ブロック層として、[化33]に示すBCPを真空蒸着により蒸着速度0.1nm/secで6nmの膜厚に成膜した以外は(実施例1)と同様にして図3に示す素子構造を作成した。この時、7.2V、1mA/cm²で520cd/m²の緑色の発光が得られた。

【0142】[実施例29]電子輸送層と陰極の間に電子 注入層として、フッ化リチウムを真空蒸着により、蒸着 速度0.1nm/secで5nmの膜厚に成膜したこ と、陰極にアルミニウムを用いたこと以外は[実施例1] と同様にして図4に示す素子構造を作成した。 【0143】この時、6.7V、1mA/cm²で50 0cd/m²の緑色の発光が得られた。

【0144】 (実施例30] 正孔輸送層の材料をPVKから (化15) に示されるN-フェニルポリカルバゾール (分子量60,000) に替えた以外は (実施例1) と同様に図2に示す素子構造を作成した。この時、5.8 V、1 mA/c m²で500 c d/m²の緑色の発光が得られた。

【0145】[実施例31]分子量1,100,000のPVK6mgを1m1の1,2ジクロロエタンで溶解して、溶液1を作成した。[化17]で示されるジノルマルオクチルポリフルオレン(分子量1,000,000)として5mgとIr(ppy)3として0.2mgとをキシレン1m1に溶解して、溶液2を作成した。【0146】[化40]で示されるPBDとして2.5mgとバインダ高分子として分子量50,000のポリ

スチレン2.5mlとをシクロヘキサン1mlに溶解して、溶液3を作成した。

【0147】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上 (市版ITO、旭硝子社製:20Ω/□以下)に溶液1 を回転数1000rpmで1秒間スピンコートする事に より50nmの膜厚の正孔輸送層を得た。

【0148】さらに、正孔輸送層上に溶液2を回転数1 000rpmで1秒間スピンコートする事により20n mの膜厚の発光層を得た。

【0149】さらに、発光層上に溶液3を回転数100 0rpmで1秒間スピンコートする事により50nmの 膜厚の電子輸送層を得た。

【0150】最後に、真空蒸着装置により真空度10⁻³ Pa下で、アルミニウムとリチウムを、リチウムが1% となるように蒸着速度1nm/secで共蒸着して陰極 を形成して図2に示す素子構造を作成した。

【0151】この時、7.8V、1mA/cm²で48 0cd/m²の緑色の発光が得られた。

【0152】 [実施例32] 【化15]で示されるN-フェニルボリカルバゾール (分子量10,000)5mgをキシレン1mlに溶解して溶液2を作成した以外は [実施例31]と同様に図2に示す案子構造を作成した。この時、8.2V、1mA/cm²で460cd/m²の緑色の発光が得られた。

【0153】 [実施例33] [化18] で示されるジノルマルオクチルフルオレン/チオフェンコポリマー(分子量60,000) として5mgをキシレン1m1に溶解して溶液2を作成した以外は(実施例32]と同様に図2に示す素子構造を作成した。

【0154】この時、7.5V、1mA/cm²で460cd/m²の緑色の発光が得られた。

【0155】[実施例34] [化18] で示されるジノルマルオクチルフルオレン/チオフェンコポリマー(分子量60,000)として5mgとIr(ppy) $_3$ として0.17mgとをキシレン1mlに溶解して溶液2を作成した以外は[実施例33]と同様に図2に示す素子構造を作成した。この時、4.5V、1mA/cm 2 で460cd/ m^2 の緑色の発光が得られた。

【0156】 (実施例35] (化1] で示される繰り返し単位中のRを直鎖のアルキル ($-C_nH_{2n+1}$) としたポリフルオレン化合物の溶解度パラメータ表示の溶解範囲を測定した。

【0157】測定方法は、下記に[実験1]として示す方法により、所定の膜厚を有する薄膜を基板上に積層したテストピースを作成し、所定の溶解度パラメータを有する溶媒に対する溶解範囲を測定することによって行った。

【0158】[実験1]有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する、正孔輸送層、電子ブロック層、発光層、正孔ブロック層、電子輸送層、電子注入層などの薄膜層

の材料となる重合体6mgを、エチルベンゼン1mlに溶解して溶液を作成する。酸素プラズマ処理を施した市販のITO基板(旭硝子社製:20Ω/□以下)上に、この溶液を、回転数1500rpmで1秒間スピンコートして、50nmの薄膜付の基板を作成し、テストピースとする。

[0159]

【表4】

溶媒名	溶解度 パラメータ
n-ペンタン	7. 05
ヘキサン	7. 30
ヘプタン	7. 45
n-オクタン	7. 54
m-ノナン	7. 64
nーデカン	7.74
1-デセン	7. 85
メチルシクロヘキサン	8. 13
シクロヘキサン	8. 20
1-クロロプロパン	8. 30
テトラクロロメタン	8. 60
エチルベンゼン	8. 70
n-キシレン	8. 80
トルエン	8. 90
トリクロロメタン	9. 10
ベンゼン	9. 20
トリクロロエチレン	9. 30
クロロベンゼン	9. 60
1.2-ジクロロエタン	9. 70
ブロモベンゼン	9. 90
⊶ジクロロペンゼン	10.00
αプロモナフタリン	10. 60
ニトロエタン	11. 10
アセトニトリル	11.80
ニトロメタン	12.70

【0160】[表4]に示す溶解度パラメータを有する溶媒を、これら溶解度パラメータ値の昇順に用意し、図5(a)及び図5(b)に示すように、それらの溶媒1で満たされたビーカー2にテストピース3をそれぞれ10秒間浸漬させ、その後、図5(c)に示すように、テストピース3を取り出して薄膜が溶解したか否かを目視で確認する。

【0161】薄膜が溶解する溶媒の溶解度パラメータの うち、最小値と最大値とをテストピースの溶解範囲と定 発する

【0162】この時使用した重合体の分子量100,000の物で実施した。溶解範囲の測定結果を下記[表5]に示す。

[0163]

【表5】

	溶解	施囲
Ln.	上限	下限
5	8. 70	7. 85
6	9, 10	7. 80
7	9, 30	8. 13
8	9.60	8, 20
9	9, 90	8, 30
10	10, 00	8, 30
[11]	10.00	8. 30
12	10.60	8. 30
13	10.60	8. 60
14	11.10	8. 60
15	11.10	8. 60

【0164】 [表5]より【化1】中にRとして用いるアルキル基の炭素数で溶解範囲が調整できる事が判る。

【0165】この時、正孔輸送層に含まれる正孔輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において8.9(cal/cm³)^{1/2}以上10.0(cal/cm³)^{1/2}以下であると正孔輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなり、さらに、電子輸送層に含まれる電子輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において7.0(cal/cm³)^{1/2}以上8.4(cal/cm³)^{1/2}以下であると電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。【0166】そこで、分子量1,100,000のPVK6mgを1mlの1,2-ジクロロエタンで溶解し

【0167】 [(41)で示される繰り返し単位中のRを直鎖のアルキル $(-C_nH_{2n+1})$ とした分子量100,000のポリフルオレン化合物として5mgと $Ir(ppy)_3$ として0.17mgとをエチルベンゼン1mlに溶解して、溶液2を作成した。

て、溶液1を作成した。

【0168】PBDとして2.5mgとバインダ高分子として分子量50,000のポリスチレン2.5mlとをシクロヘキサン1mlに溶解して、溶液3を作成した。

【0169】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上 (市販ITO、旭硝子社製:20Ω/□以下)に溶液1 を回転数1500rpmで1秒間スピンコートする事に より50nmの膜厚の正孔輸送層を形成した。この、正 孔輸送層の溶解範囲は8.9~10.0(cal/cm³)1/2であった。

【0170】さらに、正孔輸送層上に溶液2を回転数1 000rpmで1秒間スピンコートする事により20nmの膜厚の発光層を得た。

【0171】さらに、発光層上に溶液3を回転数100 0rpmで1秒間スピンコートする事により50nmの 膜厚の電子輸送層を得た最後に、アルミニウムとリチウムを、リチウムが1%となるように蒸着速度1nm/secで共蒸着して陰極を形成して図2に示す素子構造を 作成したところ、下記[表6]に示す発光効率の発光が 得られた。

[0172]

【表6】

	1mA/ci	がでの性能
	電圧(V)	輝度 (cd/ml)
5~8	素子作成出来ず	
9	7.8	480
10	7. 8	480
11	7. 8	490
12	7. 9	490
13	8.0	500
14	8. 2	500
15	8. 4	500

【0173】N≦8では、電子輸送層成膜時に発光層が 溶解してしまう為、素子は作成できなかった。

【0174】[実施例36]溶液3の溶媒をαプロモナフタリンに変更した以外は、[実施例35]と同様に図2に示す素子構造を作成したところ、下記[表7]に示す発光効率の発光が得られた。

[0175]

【表7】

	1mA/c㎡での性能	
n	電圧(Y)	輝度(cd/mi)
5	7. 8	440
6	7. 8	450
7	7. 9	450
8	7. 9	450
9	8. 0	450
10	8. 0	460
11.	8. 0	460
12~15	素子作成出来ず	

【0176】N=12~15では、電子輸送層成膜時に発光層が溶解してしまう為、素子は作成できなかった。【0177】[実施例35]と[実施例36]とにより、[化1]中にRとして示される置換基がアルキル基であるとき、このアルキル基を選択することにより、【化1】を繰り返し単位に有する重合体の溶解範囲を調整でき、下層に位置する正孔輸送層の成膜と上層に位置する電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。そして、【化1】を繰り返し単位に有する重合体を用いて構成される発光層と正孔輸送層と電子輸送層とが湿式

【0178】[実施例37][化1]で示される繰り返し単位中のRを直鎖の $-C_8H_{17}$ としたジノルマルオクチルボリフルオレンの分子量を種々設定したときの溶解度パラメータ表示での溶解範囲を測定した。測定方法は、〔実験1]と同様に行ったところ、下記 [表8] に示す測定結果が得られた。

法により積層でき、そのような構造の有機エレクトロル

ミネッセンス素子の発光が得られる。

[0179]

【表8】

分子量	溶解範囲		
774	上限	下限	
10,000	10. 60	7. 85	
60,000	10.00	7. 85	
100, 000	9. 60	8. 20	
500, 000	9. 30	8, 60	
1,000,000	9, 30	8, 60	

【0180】[表8]により(化1)を繰り返し単位に有する重合体の分子量で溶解範囲が調整できる事が判る。 【0181】ここで、正孔輸送層に含まれる正孔輸送性 物質の溶解度パラメータ範囲が室温において8.9(cal/cm³)^{1/2}以上10.0(cal/cm³)^{1/2}以下であると正孔輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなり、さらに、電子輸送層に含まれる電子輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において7.0(cal/cm³)^{1/2}以上8.4(cal/cm³)^{1/2}以下であると電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。

【0182】そこで、上記[表8]に示した分子量に調整したジノルマルオクチルポリフルオレンを使用して、 [実施例35]と同様に図2に示す素子構造を作成したところ、下記[表9]に示す発光効率の発光が得られた。 【0183】

【表9】

 分子量
 1 mA/c ㎡での性能 電圧 (V) | 輝度(cd/㎡)

 10,000 60,000 100,000 500,000 7,80 1,000,000 7,80 480

【0184】 [実施例37] [化1] で示される繰り返し単位中のRを直鎖の $-C_9H_{19}$ とした分子量100, 000のジノルマルノニルポリフルオレンとして5mgと $Ir(ppy)_9$ として0.17mgとを下記 [表10] に示す溶媒 (81m1) に溶解して溶液2を作成した以外は [実施例35] と同様に図2に示す素子構造を作成したところ、 [表10] に示す発光効率の発光が得られた。

【0185】 【表10】

溶媒名	溶解度	1 m A / c ㎡での性能	
	パラメータ	電圧 (V)	輝度(cd/mi)
1-クロロプロパン	B. 30	7. 8	450
テトラクロロメタン	8.60	7. 8	460
エチルベンゼン	8, 70	7. 8	480
m-キシレン	8, 80	7. B	480
トルエン	8. 90	亲子作	成不能

【0186】[表10]より溶媒が変化しても、輝度のばらつきは10%以内に留まることがわかる。

【0187】[実施例36]と[実施例37]とから、[化1]中にRとして示される置換基がアルキル基であるとき、[化1]を繰り返し単位に有する重合体の分子量を選択することにより、この溶解範囲を調整でき、下層に位置する正孔輸送層の成膜と上層に位置する電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。そして、[化

1]を繰り返し単位に有する重合体を用いて構成される 発光層と正孔輸送層と電子輸送層とが湿式法により積層 でき、そのような構造の有機エレクトロルミネッセンス 素子の発光が得られる。

【0188】[実施例38][化2]に示される繰り返し単位中のRを直鎖のアルキル(-C_nH_{2n+1})として生成されるポリカルバゾール化合物の溶解度パラメータでの溶解範囲を測定した。測定方法は、[実験1]と同じ方法で行った。用いたポリカルバゾール化合物の分子量10.

000としたところ、下記 [表11] に示す測定結果が 得られた。

[0189]

【表11】

	涪解範囲	
n	上限	下限
0	9. 2	8, 9
1	9, 3	8, 9
2	9. 7	8. 9
3	9.9	8, 9
4	10.0	8,9
5	10.6	8.8
6	10.6	8, 8
7	10, 6	8. 7
8	11.1	8.7
9	11, 1	8. 6
10	11.1	8.6
11	11.8	8. 6
12	11.8	8. 3
13	11. 8	8.3
14	11.8	8. 3
15	12.7以上	8. 2

【0190】(表11)より(化2)中にRとして用いるアルキル基の炭素数で溶解範囲が調整できる事が判る。

【0191】この時、正孔輸送層に含まれる正孔輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において8.9(cal/cm³)1/2以上10.0(cal/cm³)1/2以下であると正孔輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなり、さらに、電子輸送層に含まれる電子輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において7.0(cal/cm³)1/2以下であると電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。

【0192】ここで、分子量1,100,000のPV Kとして6mgを1mlの1,2-ジクロロエタンで溶 解して、溶液1を作成した。

【0193】(化2)で示される繰り返し単位中のRを直鎖のアルキル基 $(-C_nH_{2n+1})$ とした分子量10,000のN-アルキルポリカルバゾール化合物として5mgと $1r(ppy)_3$ として0.17mgとをキシレン1m1に溶解して、溶液2を作成した。

【0194】PBDとして2.5mgとバインダ高分子として分子量50,000のポリスチレン2.5mlとをシクロヘキサン1mlに溶解して、溶液3を作成した。

【0195】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上 (市販ITO、旭硝子社製:20Ω/□以下)に溶液1 を回転数1500rpmで1秒間スピンコートする事に より50nmの膜厚の正孔輸送層を形成した。この、正 孔輸送層の溶解範囲は8.9~10.0(cal/cm³)^{1/2}であった。

【0196】さらに、正孔輸送層上に溶液2を回転数1 000rpmで1秒間スピンコートする事により20n mの膜厚の発光層を得た。

【0197】さらに、発光層上に溶液3を回転数100 0rpmで1秒間スピンコートする事により50nmの 電子輸送層を得た最後に、アルミニウムとリチウムを、 リチウムが1%となるように蒸着速度1 nm/secで 共蒸着して陰極を形成して、図2に示す素子構造を作成 したところ、下記[表12]に示す発光効率の発光が得 られた。

[0198]

【表12】

		㎡での性能
n	電圧 (V)	輝度 (cd/ml)
5	8.0	460
6	8, 0	460
7	8, 1	460
8	8. 2	460
8	8, 2	470
10	8. 2	470
11	8, 2	470
12	8. 3	470
13	8. 3	460
14	8. 4	460
15	素子作成出来ず	

【0199】N=15では、電子輸送層成膜時に発光層が溶解してしまう為、素子は作成できなかった。

【0200】[実施例39]溶液3の溶媒をニトロエタンに変更した以外は、[実施例38]と同様にして図2に示す素子構造を作成したところ、下記[表13]に示す発光効率の発光が得られた。

[0201]

【表13】

I 👝 L	1 mA/c㎡での性能	
_ <u> </u>	電圧 (V)	輝度(cd/ml)
5	8. 2	430
6	8. 2	430
7.1	8, 2	430
8~15	素子作成出来ず	

【0202】N≥8では、電子輸送層成膜時に発光層が 溶解してしまう為、素子は作成できなかった。

【0203】 [実施例38] と [実施例39] とにより、 [化2] 中にRとして示される置換基がアルキル基であるとき、このアルキル基を選択することにより、

[化2]を繰り返し単位に有する重合体の溶解範囲を調整でき、下層に位置する正孔輸送層の成膜と上層に位置する電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。そして、[化2]を繰り返し単位に有する重合体を用いて構成される発光層と正孔輸送層と電子輸送層とが湿式法により積層でき、そのような構造の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光が得られる。

【0204】[実施例40][化2]で示される繰り返し単位中のRを直鎖の $-C_8H_{17}$ として生成したN-ノルマルオクチルボリカルバゾール化合物の分子量を変化させたときの、各分子量での溶解範囲を測定した。測定方法は、[実験1]と同様に行ったところ、下記[表14]に示す測定結果が得られた。

[0205]

【表14】

分子量	溶解範囲		
	上限	下限	
10,000	11.1	8.7	
60,000	10.6	8, 9	
100, 000	9, 9	9, 1	
500, 000	9. 7	9, 1	
1,000,000	9. 7	9, 3	

【0206】[表14]により(化2)を繰り返し単位に 有する重合体の分子量で溶解範囲が調整できる事が判 る。

【0207】ここで、正孔輸送層に含まれる正孔輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において8.9(cal/cm³)^{1/2}以上10.0(cal/cm³)^{1/2}以下であると正孔輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなり、さらに、電子輸送層に含まれる電子輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において7.0(cal/cm³)^{1/2}以上8.4(cal/cm³)^{1/2}以下であると電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。

【0208】ここで、上記の分子量に調整したポリカル バゾール化合物を用いて、[実施例38]と同様に図2に 示す素子構造を作成したところ、下記 [表15] に示す 発光効率の発光が得られた。

[0209]

【表15】

分子量	1mA/c㎡での性能		
nt=	電圧(V)	輝度(cd/ml)	
10,000	8.2	460	
60,000	8.2	460	

【0210】分子量100,000~1,000,00 0では溶液2が作成できなかった。

【0211】[実施例41] 【化2]で示される繰り返し単位中のRを直鎖の $-C_{12}H_{25}$ とした分子量10,000のノルマルドデシルポリカルバゾールとして5mgと $Ir(ppy)_3$ として0.17mgとを下記[表16]に示す溶媒(各1ml)に溶解し溶液2を作成した以外は(実施例35)と同様に図2に示す素子構造を作成したところ、[表16]に示す発光効率の発光が得られた。

【0212】 【表16】

溶媒名	溶解度	1 mA/c㎡での性能	
/EMP	パラメータ	電圧 (V)	輝度 (cd/mf)
1-クロロブロバン	8, 30	8, 2	440
テトラクロロメタン	8, 60	8, 2	460
エチルベンゼン	8. 70	8, 2	460
m-キシレン	8. 80	8. 2	460
トルエン	8. 90	亲子作成不能	
0-ジクロロベンゼン	10.00		
αプロモナフタリン	10.60	8, 2	440
ニトロエタン	11. 10	8. 4	440
アセトニトリル	11.80	8.4	430

【0213】溶媒が変化しても、正孔輪送層の溶解範囲外では、輝度のばらつきは10%以内に留まる。

【0214】[実施例40]と[実施例41]とから、[化2]中にRとして示される置換基がアルキル基であるとき、[化2]を繰り返し単位に有する重合体の分子量を

選択することにより、この溶解範囲を調整でき、下層に 位置する正孔輸送層の成膜と上層に位置する電子輸送層 の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。そして、[化 2]を繰り返し単位に有する重合体を用いて構成される 発光層と正孔輸送層と電子輸送層とが湿式法により積層 でき、そのような構造の有機エレクトロルミネッセンス 素子の発光が得られる。

【0215】[実施例42][化1]で示されるRとして下記[表17]に示す置換基を用いて、該[化1]を繰り返し単位に有する、分子量100,000の重合体それぞれの溶解範囲を、[実験1]に示す測定方法で測定したところ、下記[表17]に示す結果が得られた。

【0216】下記[表17]に示す溶解範囲より、[化1]中にRとして示す置換基がアルコキシル基またはアリール基の場合も、アルキル基の場合と同様に、置換基の炭素数で溶解範囲が調整できる事が判る。

【0217】この時、正孔輸送層に含まれる正孔輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において8.9(cal/cm³)^{1/2}以上10.0(cal/cm³)^{1/2}以下であると正孔輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなり、さらに、電子輸送層に含まれる電子輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において7.0(cal/cm³)^{1/2}以上8.4(cal/cm³)^{1/2}以下であると電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。

【0218】ここで、分子量1,100,000のPV Kとして6mgを1mlの1,2ジクロロエタンで溶解 して溶液1を作成した。

【0219】 $\{(0219)$ $\{(0219)$ $\{(0219)\}$ $\{($

【0220】PBDとして2.5mgとバインダ高分子として分子量50,000のポリスチレン2.5mlとをシクロヘキサン1mlに溶解して、溶液3を作成した。

【0221】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上 (市販ITO、旭硝子社製: 20Ω/□以下) に溶液1 を回転数1500rpmで1秒間スピンコートする事に より50nmの膜厚の正孔輸送層を形成した。この正孔 輸送層の溶解範囲は8.9~10.0(cal/c m³) 1/2であった。

【0222】さらに、正孔輸送層上に溶液2を回転数1 000rpmで1秒間スピンコートする事により20nmの膜厚の発光層を得た。

【0223】さらに、発光層上に溶液3を回転数100 0rpmで1秒間スピンコートする事により50nmの 膜厚の電子輸送層を得た。

【0224】最後に、アルミニウムとリチウムとを、リチウムが1%となるように蒸着速度1nm/secで共

蒸着して陰極を形成した。このようにして図2に示す素子を作成したところ、下記(表17)に示す発光効率の発光が得られた。

[0225]

【表17】

R	油解範囲		1mA/s㎡での性能	
	上限	下限	電圧 (V)	輝度(cd/ml)
C(CH ₃) ₃	8.8	8.2	8. 2	450
CaHs	8.9	8. 2	8.0	460
C.H.CH.	9.3	8.7	8, 0	430
OC ₈ H ₁₁	8.6	7.6	素子作成不能	
OCaH ₁₇	9. 3	8.2		
OC ₉ H ₁₈	9. 7	8.3	7. 6	480
CHaNHg	11.8	10.6	7. 8	470
СООН	8,6	6. B	8, 0	440

【0226】[表17]により、[化1]中にRとして示される置換基が、アルコキシル基やアリール基であるときも、このアルコキシル基やアリール基を選択することにより、[化1]を繰り返し単位に有する重合体の溶解範囲を調整でき、下層に位置する正孔輸送層の成膜と上層に位置する電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。そして、[化1]を繰り返し単位に有する重合体を用いて構成される発光層と正孔輸送層と電子輸送層とが湿式法により積層でき、そのような構造の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光が得られる。

【0227】このような発光層と正孔輸送層と電子輸送層との積層は、アルキル基の場合と同様に、【化1】中にRとして示される置換基にアルコキシル基やアリール基を用い、該【化1】を繰り返し単位に有する重合体の分子量を選択して、その重合体の溶解範囲を調整することによっても形成できる。

【0228】 [実施例43] [化2]中のRとして下記[表 18]に示す置換基を用いて、該[化2]を繰り返し単位 に有する、分子量10,000の重合体それぞれの溶解 範囲を、[実験1]に示す測定方法で測定したところ、 下記 [表18] に示す結果が得られた。

【0229】下記[表18]に示す溶解範囲より、[化2]中にRとして示す置換基がアルコキシル基またはアリール基の場合も、アルキル基の場合と同様に、置換基の炭素数で溶解範囲が調整できる事が判る。

【0230】この時、正孔輸送層に含まれる正孔輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において8.9(cal/cm³)^{1/2}以上10.0(cal/cm³)^{1/2}以下であると正孔輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなり、さらに、電子輸送層に含まれる電子輸送性物質の溶解度パラメータ範囲が室温において7.0(cal/cm³)^{1/2}以上8.4(cal/cm³)^{1/2}以下であると電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。

【0231】ここで、分子量1,100,000のPV Kとして6mgを1mlの1,2ジクロロエタンで溶解 して溶液1を作成した。

【0232】[化2]中のRとして下記[表18]に示される置換基を用い、該[化2]を繰り返し単位として

有する分子量10,000の重合体として5mgとIr(ppy) $_3$ として0.17mgとをエチルベンゼン1 ml(Rが CH_3 N H_2 のときのみニトロエタン)に溶解して、溶液2を作成した。

【0233】PBDとして2.5mgとバインダ高分子として分子量50,000のポリスチレン2.5mlとをシクロヘキサン1mlに溶解して、溶液3を作成した。

【0234】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上 (市版ITO、旭硝子社製:20Ω/□以下)に溶液1 を回転数1500rpmで1秒間スピンコートする事に より50nmの膜厚の正孔輸送層を形成した。この正孔 輸送層の溶解範囲は8.9~10.0(cal/c m³)^{1/2}であった。 【0235】さらに、正孔輸送層上に溶液2を回転数1 000rpmで1秒間スピンコートする事により20nmの膜厚の発光層を得た。

【0236】さらに、発光層上に溶液3を回転数100 0rpmで1秒間スピンコートする事により50nmの 膜厚の電子輸送層を得た。

【0237】最後に、アルミニウムとリチウムとを、リチウムが1%となるように蒸着速度1nm/secで共蒸着して陰極を形成した。このようにして図2に示す素子を作成したところ、下記[表18]に示す発光効率の発光が得られた。

【0238】 【表18】

R	溶解範囲		1mA/smでの性能	
	上限	下限	電圧 (V)	輝度(cd/ml)
OC ₃ H ₇	10.0	8. 9	索子作成不能	
OC4H9	10.6	8.8	8.0	410
C(CH ₃) ₃	10.0	8.8	8.0	400
OC(CH ₃) ₃	10. 6	8. 7	8.1	420
C ₆ H ₅	10.0	8.8	8.0	410
C ₆ H ₄ CH ₉	10.6	8.8	8.0	410
CHaNHa	11. 8	9. 2	8.1	400
СООН	10.6	8. 2	来子作	成不能

【0239】[表18]により、[化2]中にRとして示される置換基が、アルコキシル基やアリール基であるときも、このアルコキシル基やアリール基を選択することにより、[化2]を繰り返し単位に有する重合体の溶解範囲を調整でき、下層に位置する正孔輸送層の成膜と上層に位置する電子輸送層の成膜に用いる溶媒を選択し易くなる。そして、[化2]を繰り返し単位に有する重合体を用いて構成される発光層と正孔輸送層と電子輸送層とが湿式法により積層でき、そのような構造の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光が得られる。

【0240】このような発光層と正孔輸送層と電子輸送層との積層は、アルキル基の場合と同様に、[化2]中にRとして示される置換基にアルコキシル基やアリール基を用い、該[化2]を繰り返し単位に有する重合体の分子量を選択して、その重合体の溶解範囲を調整することによっても形成できる。

[0241]

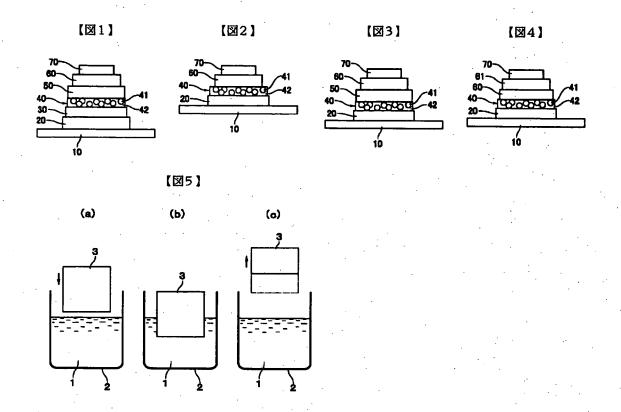
【発明の効果】以上の説明から明らかなように、本発明 に用いるホスト剤は導電性高分子から構成され、イオン 化ポテンシャルが比較的小さいため、このようなホスト 剤を有する発光層を具備する有機エレクトロルミネッセ ンス素子は、比較的低電圧の駆動により高輝度の発光が 得られる。即ち、発光効率を向上させることができる。 【0242】また、本発明の発光層に用いる導電性高分子から成るホスト剤は、分子構造中の置換基や高分子の分子量を選択して溶解範囲を調整できるので、隣接層たる正孔輸送層と電子輸送層との成膜に用いる溶媒を選択し易くなり、素子構造の作成が容易である。

【図面の簡単な説明】

- 【図1】有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造
- 【図2】本発明の素子構造の第1の実施形態
- 【図3】本発明の素子構造の第2の実施形態
- 【図4】本発明の素子構造の第3の実施形態
- 【図5】(a)~(c)溶解度パラメータ表示によるサンプルピースの溶解範囲の測定手順

【符号の説明】

- 10 陽極層
- 20 正孔輸送層
- 40 発光層
- 41 ドープ剤
- 42 ホスト剤
- 60 電子輸送層
- 70 陰極層



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7 H 0 5 B 33/22 // C 0 7 D 213/16 277/66 409/14 識別記号

F I H 0 5 B 33/22 C 0 7 D 213/16 277/66 409/14

テーマコード(参考)

Ó

F ターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB06 AB18 CA01 CB01 DA01 DB03 EB00 FA01 4C055 AA15 BA02 BA11 CA01 DA01 4C063 AA01 AA03 AA05 BB03 BB06 CC04 CC12 CC52 CC62 CC92 DD03 DD12 DD52 DD62 EE10